

OPTICAL FILM AND ITS MANUFACTURING METHOD**Publication number:** JP2004078203**Publication date:** 2004-03-11**Inventor:** MURAKAMI NAHO; YOSHIMI HIROYUKI; NISHIKOJI YUICHI; HAYASHI MASAKI**Applicant:** NITTO DENKO CORP**Classification:**

- International: G02B5/30; G02F1/13363; H01L51/50; H05B33/02; H05B33/14; G02B5/30; G02F1/13; H01L51/50; H05B33/02; H05B33/14; (IPC1-7): G02B5/30; G02F1/13363; H05B33/02; H05B33/14

- european:**Application number:** JP20030279378 20030724**Priority number(s):** JP20030279378 20030724; JP20020220759 20020730**Report a data error here****Abstract of JP2004078203**

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an optical film which is excellent in optical characteristics and can easily be manufactured at a low cost.

SOLUTION: In this optical film where a transparent macromolecular film layer and a birefringent layer made of non-liquid crystal polymer are laminated, the birefringent layer satisfies the condition of the following equation (1), and in-plane phase difference of the transparent macromolecular film layer is set to ≤ 50 nm. The equation (1) is $n_x \geq n_y > n_z$, wherein n_x , n_y , and n_z are the refractive indexes of an X axes direction, a Y axis direction and a Z axis direction, respectively. The X axis direction is an axial direction showing a maximum refractive index in the in-plane direction of the birefringent layer, the Y axis direction is an axial direction perpendicular to the X axis direction in the plane, and the Z axis direction shows a thickness direction perpendicular to the X axis direction and the Y axis direction.

COPYRIGHT: (C)2004,JPO

Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-78203

(P2004-78203A)

(43) 公開日 平成16年3月11日(2004.3.11)

(51) Int. Cl. ⁷	F I	テーマコード (参考)
G02B 5/30	G02B 5/30	2H049
G02F 1/13363	G02F 1/13363	2H091
H05B 33/02	H05B 33/02	3K007
H05B 33/14	H05B 33/14 A	

審査請求 未請求 請求項の数 24 O L (全 31 頁)

(21) 出願番号	特願2003-279378 (P2003-279378)	(71) 出願人	000003964
(22) 出願日	平成15年7月24日 (2003.7.24)		日東電工株式会社
(31) 優先権主張番号	特願2002-220759 (P2002-220759)		大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号
(32) 優先日	平成14年7月30日 (2002.7.30)	(74) 代理人	110000040
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		特許業務法人池内・佐藤アンドパートナーズ
		(72) 発明者	村上 奈穂
			大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内
		(72) 発明者	吉見 裕之
			大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内
		(72) 発明者	西小路 祐一
			大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 光学フィルムおよびその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 光学特性に優れ、簡単かつ低コストで製造可能な光学フィルムを提供する。

【解決手段】 透明高分子フィルム層と、非液晶性ポリマーから形成された複屈折層とが積層された光学フィルムにおいて、前記複屈折層が下記式(1)の条件を満たし、かつ前記透明高分子フィルム層の面内位相差を50nm以下とする。

$$n_x \geq n_y > n_z \quad \dots (1)$$

前記式(1)において、 n_x 、 n_y および n_z は、それぞれ、前記複屈折層における、X軸方向、Y軸方向およびZ軸方向の屈折率を示す。前記X軸方向は、前記複屈折層の面内方向において最大の屈折率を示す軸方向であり、前記Y軸方向は、前記面内における前記X軸方向に対して垂直な軸方向であり、前記Z軸方向は、前記X軸方向および前記Y軸方向に垂直な厚み方向を示す。

【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

透明高分子フィルム層と、非液晶性ポリマーから形成された複屈折層とが積層された光学フィルムであって、複屈折層が、下記式(1)の条件を満たし、かつ前記透明高分子フィルム層の面内位相差が50nm以下である光学フィルム。

$$n_x \geq n_y > n_z \quad \dots (1)$$

前記式(1)において、 n_x 、 n_y および n_z は、それぞれ、前記複屈折層における、X軸方向、Y軸方向およびZ軸方向の屈折率を示す。

前記X軸方向は、前記複屈折層の面内方向において最大の屈折率を示す軸方向であり、前記Y軸方向は、前記面内における前記X軸方向に対して垂直な軸方向であり、前記Z軸方向は、前記X軸方向および前記Y軸方向に垂直な厚み方向を示す。

【請求項 2】

前記複屈折層の複屈折率 $\Delta n(a)$ および前記透明高分子フィルム層の複屈折率 $\Delta n(b)$ が、下記式(2)の条件を満たす請求項1記載の光学フィルム。

$$\Delta n(a) > \Delta n(b) \times 10 \quad \dots (2)$$

【請求項 3】

光学フィルム全体の複屈折率(Δn)が、0.0005～0.5の範囲である請求項1または2に記載の光学フィルム。

【請求項 4】

前記複屈折層を形成する非液晶性ポリマーが、ポリアミド、ポリイミド、ポリエステル、ポリエーテルケトン、ポリアミドイミドおよびポリエステルイミドからなる群から選ばれる少なくとも一種のポリマーである請求項1から3のいずれかに記載の光学フィルム。

【請求項 5】

前記透明高分子フィルム層を形成する樹脂が、アセテート樹脂、ポリエステル樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、ポリスルホン樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂、ポリオレフィン樹脂、アクリル樹脂、ポリノルボルネン樹脂、セルロース樹脂、ポリアリレート樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリビニルアルコール樹脂、ポリ塩化ビニル樹脂、ポリ塩化ビニリデン樹脂、ポリアクリル樹脂、これらの混合樹脂、液晶ポリマー、および側鎖に置換イミド基または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂と側鎖に置換フェニル基または非置換フェニル基とニトリル基とを有する熱可塑性樹脂との混合物からなる群から選択される少なくとも一つの樹脂である請求項1から4のいずれかに記載の光学フィルム。

【請求項 6】

前記透明高分子フィルム層を形成する樹脂が、トリアセチルアセテートおよびイソブテンとN-メチレンマレイミドからなる交互共重合体とアクリロニトリル・スチレン共重合体との混合樹脂の少なくとも一方である請求項1から4のいずれかに記載の光学フィルム。

【請求項 7】

前記透明高分子フィルム層が、その形成材料樹脂をフィルム状に成形し、延伸処理されることにより製造されたものである請求項1から6のいずれかに記載の光学フィルム。

【請求項 8】

前記透明高分子フィルム層が、偏光板の透明保護フィルムとして使用される請求項1から7のいずれかに記載の光学フィルム。

【請求項 9】

光学フィルムおよび偏光子を含む偏光板であって、前記光学フィルムが請求項1から8に記載の光学フィルムである偏光板。

【請求項10】

前記光学フィルムの透明高分子フィルム層が、偏光板の透明保護フィルムを兼ねる請求項9記載の偏光板。

【請求項11】

前記光学フィルムが、光学補償層として機能する請求項9または10記載の偏光板。

【請求項12】

液晶セルおよび光学部材を含む液晶パネルであって、前記光学部材が、前記液晶セルの少なくとも一方の表面に配置され、前記光学部材が、請求項1から8のいずれかに記載の光学フィルム若しくは請求項9から11のいずれかに記載の偏光板である液晶パネル。

【請求項13】

前記液晶セルが、STN (Super Twisted Nematic) セル、TN (Twisted Nematic) セル、IPS (In-Plane Switching) セル、VA (Vertical Aligned) セル、OCB (Optically Aligned Birefringence) セル、HAN (Hybrid Aligned Nematic) セルおよびASM (Axially Symmetric Aligned Microcell) セルからなる群から選択される少なくとも一つである請求項12記載の液晶パネル。

【請求項14】

請求項12または13記載の液晶パネルを含む液晶表示装置。

【請求項15】

請求項1から8のいずれかに記載の光学フィルムおよび請求項9から11のいずれかに記載の偏光板の少なくとも一方を含む自発光型表示装置。

【請求項16】

請求項1から8のいずれかに記載の光学フィルムおよび請求項9から11のいずれかに記載の偏光板の少なくとも一方を含む有機ELディスプレイ。

【請求項17】

透明高分子フィルム層と複屈折層とが積層された光学フィルムの製造方法であって、面内位相差が50nm以下の透明高分子フィルムを準備し、この上に、非液晶性ポリマー溶液を塗布し、前記溶液中の溶媒を蒸発除去することにより複屈折層を形成し、前記複屈折層を、下記式(1)の条件を満たすようにする製造方法。

$$n_x \geq n_y > n_z \quad \dots (1)$$

前記式(1)において、 n_x 、 n_y および n_z は、それぞれ、前記複屈折層における、X軸方向、Y軸方向およびZ軸方向の屈折率を示す。

前記X軸方向は、前記複屈折層の面内方向において最大の屈折率を示す軸方向であり、前記Y軸方向は、前記面内における前記X軸方向に対して垂直な軸方向であり、前記Z軸方向は、前記X軸方向および前記Y軸方向に垂直な厚み方向を示す。

【請求項18】

前記複屈折層の屈折率 $\Delta n(a)$ および前記透明高分子フィルム層の複屈折率 $\Delta n(b)$ が、下記式(2)の条件を満たすように前記両層を形成する請求項17記載の製造方法。

$$\Delta n(a) > \Delta n(b) \times 10 \quad \dots (2)$$

【請求項19】

光学フィルム全体の複屈折率(Δn)を、0.0005~0.5の範囲にする請求項17または18に記載の製造方法。

【請求項20】

前記複屈折層を形成する非液晶性ポリマーが、ポリアミド、ポリイミド、ポリエステル、ポリエーテルケトン、ポリアミドイミドおよびポリエステルイミドからなる群から選ばれる少なくとも一種のポリマーである請求項17から19のいずれかに記載の製造方法。

【請求項21】

前記透明高分子フィルム層を形成する樹脂が、アセテート樹脂、ポリエステル樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、ポリスルホン樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂、ポリオレフィン樹脂、アクリル樹脂、ポリノルボルネン樹脂、セルロース樹脂、ポリアリレート樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリビニルアルコール樹脂、ポリ塩化ビニル樹脂、ポリ塩化ビニリデン樹脂、ポリアクリル樹脂、これらの混合樹脂、液晶ポリマー、および側鎖に置換イミド基または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂と側鎖に置換フェニル基または非置換フェニル基とニトリル基とを有する熱可塑性樹脂との混合物からなる群から選択される少なくとも一つの樹脂である請求項 17 から 20 のいずれかに記載の製造方法。

【請求項 22】

10

前記透明高分子フィルム層を形成する樹脂が、トリアセチルアセテートおよびイソブテンと N-メチレンマレイミドからなる交互共重合体とアクリロニトリル・スチレン共重合体との混合樹脂の少なくとも一方である請求項 17 から 20 のいずれかに記載の製造方法。

【請求項 23】

前記透明高分子フィルム層を、その形成材料樹脂をフィルム状に成形した後、延伸処理されることにより製造する請求項 17 から 21 のいずれかに記載の製造方法。

【請求項 24】

前記透明高分子フィルム層と前記複屈折層を積層した後、この積層体を延伸若しくは収縮させる請求項 17 から 23 のいずれかに記載の製造方法。

20

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、光学フィルムおよびその製造方法に関する。

【背景技術】

30

【0002】

液晶表示装置には、表示性能を改善するために、様々な光学フィルムが使用されている。例えば、下記条件 (1) を満足する光学フィルム (位相差フィルム) は、液晶セルと偏光板との間に配置され、液晶表示装置の視角補償を行うのに使用される。このような光学フィルムは、高分子フィルムを延伸処理することにより、製造されている (特許文献 1、2、3 参照)。

【0003】

$$n_x \geq n_y > n_z \quad \cdots (1)$$

前記式 (1) において、 n_x 、 n_y および n_z は、それぞれ、前記光学フィルムにおける、X 軸方向、Y 軸方向および Z 軸方向の屈折率を示す。

40

前記 X 軸方向は、前記光学フィルムの面内方向において最大の屈折率を示す軸方向であり、前記 Y 軸方向は、前記面内における前記 X 軸方向に対して垂直な軸方向であり、前記 Z 軸方向は、前記 X 軸方向および前記 Y 軸方向に垂直な厚み方向を示す。

【0004】

しかしながら、延伸処理法による製造方法では、延伸倍率および延伸方向等の条件の詳細な設定が必要であり、延伸処理を精密に制御する必要があり、工程が煩雑となる。また、延伸処理法では、ポーイング現象を解決する必要もある。さらに、延伸処理法では、ある程度の厚みを持つ高分子フィルムを使用する必要があり、このため得られた光学フィルムも膜厚であり、その結果、液晶表示装置も厚くなるという問題がある。

50

【0005】

他方、延伸処理によらないで光学フィルムを製造する方法がある。例えば、ポリアミド、ポリイミド、ポリエステル、ポリエーテルケトン、ポリアミドイミドおよびポリエステルイミド等のポリマーの溶液を、表面が平滑な基材に塗布し、前記溶液の溶媒を蒸発除去して光学フィルムを形成することができる（特許文献4, 5, 6, 7, 8参照）。前記基材としては、SUSベルト、銅薄板、ガラス板、Siウエハ等の無機基材が主に使用される。しかし、無機基材を使用すると、それ自身は液晶表示装置に使用できないため、基材から偏光子等へ光学フィルムを転写する必要がある。また、基材上に形成された光学フィルムを、基材から剥離して巻き取ることも行われている。このように、無機基材を用いると、光学フィルムの製造が煩雑になり、無機基材のコストが高いという問題もある。

10

【0006】

このように、従来の光学フィルムは、その製造方法に問題があるが、光学フィルム自体に対しても、さらなる光学特性の向上が求められている。

【特許文献1】特開平3-33719号公報

【特許文献2】特開平3-24502号公報

【特許文献3】特開平4-194820号公報

【特許文献4】米国特許第5,344,916号公報

【特許文献5】米国特許第5,395,918号公報（特表平8-511812号公報）

【特許文献6】米国特許第5,480,964号公報

【特許文献7】米国特許第5,580,950号公報

【特許文献8】米国特許第6,074,709号公報

20

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

したがって、本発明は、簡単かつ低コストで製造することができ、光学特性に優れた光学フィルムおよびその製造方法を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0008】

前記課題を解決するために、本発明の光学フィルムは、透明高分子フィルム層と、非液晶性ポリマーから形成された複屈折層とが積層された光学フィルムであって、前記複屈折層が下記式(1)の条件を満たし、かつ前記透明高分子フィルム層の面内位相差が50nm以下である。

30

【0009】

$$n_x \geq n_y > n_z \quad \dots (1)$$

前記式(1)において、 n_x 、 n_y および n_z は、それぞれ、前記複屈折層における、X軸方向、Y軸方向およびZ軸方向の屈折率を示す。

前記X軸方向は、前記複屈折層の面内方向において最大の屈折率を示す軸方向であり、前記Y軸方向は、前記面内における前記X軸方向に対して垂直な軸方向であり、前記Z軸方向は、前記X軸方向および前記Y軸方向に垂直な厚み方向を示す。

40

【0010】

つぎに、本発明の光学フィルムの製造方法は、透明高分子フィルム層と複屈折層とが積層された光学フィルムの製造方法であって、面内位相差が50nm以下の透明高分子フィルムを準備し、この上に、非液晶性ポリマー溶液を塗布し、前記溶液中の溶媒を蒸発除去することにより複屈折層を形成し、前記複屈折層を、前記式(1)の条件を満たすようにする製造方法である。

【発明の効果】

【0011】

このように、本発明の光学フィルムは、透明高分子フィルム層を基材として用い、これに複屈折層を積層しているため、積層状態で、このまま使用でき、基材からの剥離作業や巻取り作業を必要とせず、しかも透明高分子フィルム層は低コストである。このため、本

50

発明の光学フィルムは、従来に比べて簡単かつ低コストで製造できる。また、本発明の光学フィルムにおいて、前記透明高分子フィルム層の面内位相差を50nm以下としている。このため光学フィルム全体としての位相差を適切な範囲にすることができ、コントラストおよび視野角特性等の光学特性に優れる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0012】

つぎに、本発明を詳しく説明する。

【0013】

本発明の光学フィルムにおいて、前記複屈折層は、前記条件1を満たすことが必要である。なお、図4に、前記複屈折層における屈折率 n_x 、 n_y および n_z の一例を示す。図示のように、 n_x 、 n_y および n_z は、それぞれ、前記複屈折層における、X軸方向、Y軸方向およびZ軸方向の屈折率を示す。前記X軸方向は、前記複屈折層の面内方向において最大の屈折率を示す軸方向であり、前記Y軸方向は、前記面内における前記X軸方向に対して垂直な軸方向であり、前記Z軸方向は、前記X軸方向および前記Y軸方向に垂直な厚み方向を示す。

$n_x = n_y > n_z$ の光学特性を持つ場合は、光学的に一軸の特性であり、このような光学フィルムを、通常、Cプレートと言う。また、 $n_x > n_y > n_z$ の光学特性を持つ場合は、光学的に二軸の特性である。光学的に一軸の特性の場合、 n_x と n_y は、原則として一致するが、実際の測定値は誤差が伴う。前記複屈折層の厚み(d)が、例えば、0.1 μm ~50 μm の場合、 $\Delta n d = (n_x - n_y) \cdot d < 5 \text{ nm}$ であれば、光学的に一軸の特性といえ、前記範囲を超える場合は、光学的に二軸であるといえる。なお、本発明の複屈折層は、光学的に一軸および二軸のいずれであってもよいから、厳密に区別する必要は無い。

【0014】

本発明の光学フィルムおよびその製造方法において、前記複屈折層の複屈折率 $\Delta n(a)$ および前記透明高分子フィルム層の複屈折率 $\Delta n(b)$ が、下記式(2)から(7)のいずれかの条件を満たすことが好ましい。この条件を満たすことにより、コントラストや視野角特性等の光学特性がさらに向上する。なお、下記式において、式(2)から式(7)になるにしたがい、好ましくなる。

【0015】

$$\Delta n(a) > \Delta n(b) \times 10 \dots (2)$$

$$\Delta n(a) > \Delta n(b) \times 15 \dots (3)$$

$$\Delta n(a) > \Delta n(b) \times 20 \dots (4)$$

$$\Delta n(a) > \Delta n(b) \times 30 \dots (5)$$

$$\Delta n(a) > \Delta n(b) \times 40 \dots (6)$$

$$\Delta n(a) > \Delta n(b) \times 50 \dots (7)$$

本発明の光学フィルムおよびその製造方法において、光学フィルム全体の複屈折率(Δn)は、0.0005~0.5の範囲であることが好ましい。 Δn が0.0005以上であれば、光学フィルムを薄くすることが可能となり、0.5以下であれば、位相差の制御が容易になるという利点がある。 Δn のより好ましい範囲は、0.001~0.2の範囲であり、さらに好ましい範囲は、0.002~0.15の範囲である。

【0016】

本発明の光学フィルムおよびその製造方法において、前記複屈折層を形成する非液晶性ポリマーは、特に制限されず、例えば、ポリアミド、ポリイミド、ポリエステル、ポリエーテルケトン、ポリアミドイミド、ポリエステルイミド、これらの混合物があげられる。

【0017】

本発明の光学フィルムおよびその製造方法において、前記透明高分子フィルム層を形成する樹脂は、特に制限されず、例えば、アセテート樹脂、ポリエステル樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、ポリスルホン樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリアミド樹脂、ポリイミ

ド樹脂、ポリオレフィン樹脂、アクリル樹脂、ポリノルボルネン樹脂、セルロース樹脂、ポリアリレート樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリビニルアルコール樹脂、ポリ塩化ビニル樹脂、ポリ塩化ビニリデン樹脂、ポリアクリル樹脂、これらの混合樹脂、液晶ポリマー、および側鎖に置換イミド基または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂と側鎖に置換フェニル基または非置換フェニル基とニトリル基とを有する熱可塑性樹脂との混合物等があげられる。アセテート樹脂としては、例えば、トリアセチルアセテートがある。また、側鎖に置換イミド基または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂と側鎖に置換フェニル基または非置換フェニル基とニトリル基とを有する熱可塑性樹脂との混合物としては、例えば、イソブテンとN-メチレンマレイミドからなる交互共重合体とアクリロニトリル・スチレン共重合体との混合樹脂がある。

10

【0018】

本発明の光学フィルムおよびその製造方法において、前記透明高分子フィルム層は、特に制限されず、その形成材料樹脂をフィルム状に成形し、延伸処理されることにより製造されたものであってもよい。また、本発明の光学フィルムの製造方法において、前記透明高分子フィルム層と前記複屈折層を積層した後、この積層体を延伸若しくは収縮してもよい。

【0019】

本発明の光学フィルムおよびその製造方法において、前記透明高分子フィルム層が、偏光板の透明保護フィルムとして使用されてもよい。

20

【0020】

本発明の偏光板は、光学フィルムおよび偏光子を含む偏光板であって、前記光学フィルムが前記本発明の光学フィルムである。前記光学フィルムの透明高分子フィルム層は、偏光板の透明保護フィルムを兼ねることが好ましい。また、前記光学フィルムが、光学補償層として機能することが好ましい。

【0021】

本発明の液晶パネルは、液晶セルおよび光学部材を含む液晶パネルであって、前記光学部材が、前記液晶セルの少なくとも一方の表面に配置され、前記光学部材が、前記本発明の光学フィルム若しくは前記本発明の偏光板である。本発明の前記液晶セルの種類は、特に制限されず、例えば、STN (Super Twisted Nematic) セル、TN (Twisted Nematic) セル、IPS (In-Plane Switching) セル、VA (Vertical Aligned) セル、OCB (Optically Aligned Birefringence) セル、HAN (Hybrid Aligned Nematic) セルおよびASM (Axially Symmetric Aligned Microcell) セルなどがある。この中で、本発明の光学フィルムは、VAセル、OCBセルに適用することが好ましい。

30

【0022】

本発明の液晶表示装置は、前記本発明の液晶パネルを含む液晶表示装置である。

【0023】

本発明の自発光型表示装置は、前記本発明の光学フィルムおよび前記本発明の偏光板の少なくとも一方を含む自発光型表示装置である。自発光型表示装置としては、例えば、有機ELディスプレイなどがある。

【0024】

つぎに、本発明の光学フィルムの製造方法の一例について説明する。本発明の光学フィルムは、例えば、面内位相差が50nm以下の透明高分子フィルムを準備し、この上に、非液晶性ポリマー溶液を塗布し、前記溶液中の溶媒を蒸発除去することにより複屈折層を形成し、前記複屈折層を、前記式(1)の条件を満たすようにすることにより製造できる。

40

【0025】

複屈折層の形成に使用する前記非液晶性ポリマーとしては、前述のように、例えば、耐熱性、耐薬品性、透明性に優れ、剛性にも富むことから、ポリアミド、ポリイミド、ポリエステル、ポリエーテルケトン、ポリアリールエーテルケトン、ポリアミドイミド、ポリエステルイミド等のポリマーが好ましい。これらのポリマーは、いずれか一種類を単独で

50

使用してもよいし、例えば、ポリアリールエーテルケトンとポリアミドとの混合物のように、異なる官能基を持つ2種以上の混合物として使用してもよい。このようなポリマーの中でも、高透明性、高配向性、高延伸性であることから、ポリイミドが特に好ましい。

【0026】

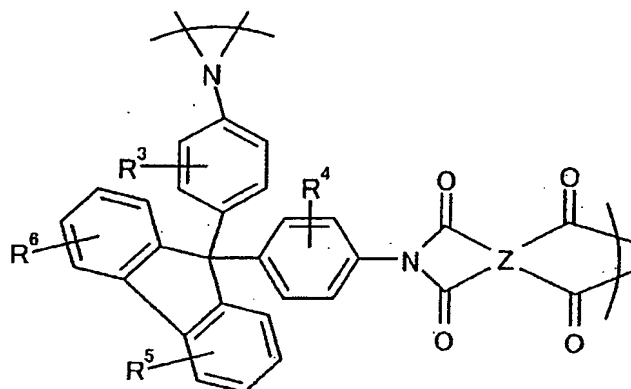
前記ポリマーの分子量は、特に制限されないが、例えば、重量平均分子量(Mw)が1,000~1,000,000の範囲であることが好ましく、より好ましくは2,000~500,000の範囲である。

【0027】

前記ポリイミドとしては、例えば、面内配向性が高く、有機溶剤に可溶なポリイミドが好ましい。具体的には、例えば、特表2000-511296号公報に開示された、9,9-ビス(アミノアリール)フルオレンと芳香族テトラカルボン酸二無水物との縮合重合生成物を含み、下記式(1)に示す繰り返し単位を1つ以上含むポリマーが使用できる。

【0028】

【化1】



(1)

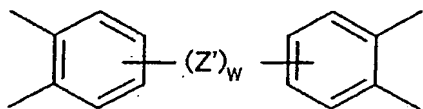
前記式(1)中、R³~R⁶は、水素、ハロゲン、フェニル基、1~4個のハロゲン原子またはC1~10アルキル基で置換されたフェニル基、およびC1~10アルキル基からなる群からそれぞれ独立に選択される少なくとも一種の置換基である。好ましくは、R³~R⁶は、ハロゲン、フェニル基、1~4個のハロゲン原子またはC1~10アルキル基で置換されたフェニル基、およびC1~10アルキル基からなる群からそれぞれ独立に選択される少なくとも一種の置換基である。

【0029】

前記式(1)中、Zは、例えば、C6~20の4価芳香族基であり、好ましくは、ピロメリット基、多環式芳香族基、多環式芳香族基の誘導体、または、下記式(2)で表される基である。

【0030】

【化2】



(2)

前記式(2)中、Z'は、例えば、共有結合、C(R⁷)₂基、CO基、O原子、S原子、SO₂基、Si(C₂H₅)₂基、または、NR⁸基であり、複数の場合、それぞれ同一であるかまたは異なる。また、wは、1から10までの整数を表す。R⁷は、それぞれ独立に、水素またはC(R⁹)₃である。R⁸は、水素、C1~C20のアルキル基、またはC6~20アリール基であり、複数の場合、それぞれ同一であるかまたは異なる。R⁹は、それぞれ独立に、水素、フッ素、または塩素である。

【0031】

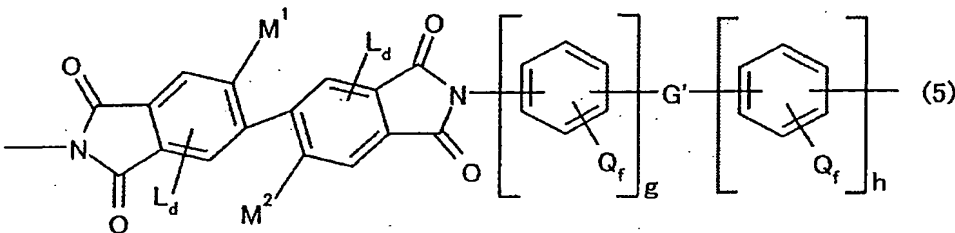
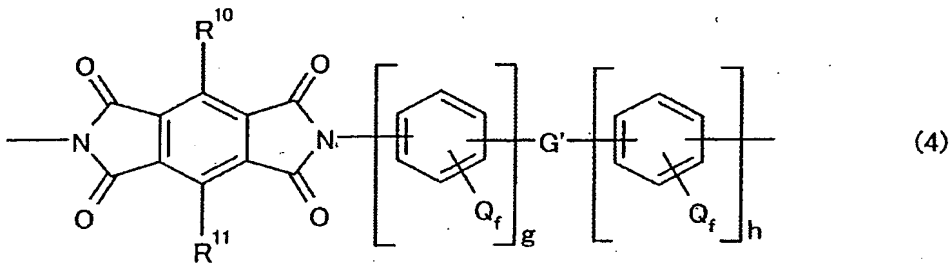
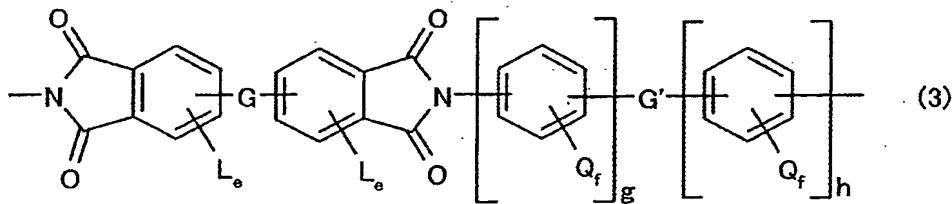
前記多環式芳香族基としては、例えば、ナフタレン、フルオレン、ベンゾフルオレンまたはアントラセンから誘導される4価の基があげられる。また、前記多環式芳香族基の置換誘導体としては、例えば、C1～10のアルキル基、そのフッ素化誘導体、およびFやC1等のハロゲンからなる群から選択される少なくとも一つの基で置換された前記多環式芳香族基があげられる。

【0032】

この他にも、例えば、特表平8-511812号公報に記載された、繰り返し単位が下記一般式(3)または(4)で示されるホモポリマーや、繰り返し単位が下記一般式(5)で示されるポリイミド等があげられる。なお、下記式(5)のポリイミドは、下記式(3)のホモポリマーの好ましい形態である。

【0033】

【化3】



前記一般式(3)～(5)中、GおよびG'は、例えば、共有結合、CH₂基、C(CH₃)₂基、C(CF₃)₂基、C(CX₃)₂基(ここで、Xは、ハロゲンである。)、CO基、O原子、S原子、SO₂基、Si(CH₂CH₃)₂基、および、N(CH₃)基からなる群から、それぞれ独立して選択される基を表し、それぞれ同一でも異なってもよい。

【0034】

前記式(3)および式(5)中、Lは、置換基であり、dおよびeは、その置換数を表す。Lは、例えば、ハロゲン、C1-3アルキル基、C1-3ハロゲン化アルキル基、フェニル基、または、置換フェニル基であり、複数の場合、それぞれ同一であるかまたは異なる。前記置換フェニル基としては、例えば、ハロゲン、C1-3アルキル基、およびC1-3ハロゲン化アルキル基からなる群から選択される少なくとも一種の置換基を有する置換フェニル基があげられる。また、前記ハロゲンとしては、例えば、フッ素、塩素、臭素またはヨウ素があげられる。dは、0から2までの整数であり、eは、0から3までの整数である。

【0035】

10

20

30

40

50

前記式(3)～(5)中、Qは置換基であり、fはその置換数を表す。Qとしては、例えば、水素、ハロゲン、アルキル基、置換アルキル基、ニトロ基、シアノ基、チオアルキル基、アルコキシ基、アリール基、置換アリール基、アルキルエステル基、および置換アルキルエステル基からなる群から選択される原子または基であって、Qが複数の場合、それぞれ同一であるかまたは異なる。前記ハロゲンとしては、例えば、フッ素、塩素、臭素およびヨウ素があげられる。前記置換アルキル基としては、例えば、ハロゲン化アルキル基があげられる。また前記置換アリール基としては、例えば、ハロゲン化アリール基があげられる。fは、0から4までの整数であり、gおよびhは、それぞれ0から3および1から3までの整数である。また、gおよびhは、1より大きいことが好ましい。

【0 0 3 6】

前記式(4)中、R¹⁰およびR¹¹は、水素、ハロゲン、フェニル基、置換フェニル基、アルキル基、および置換アルキル基からなる群から、それぞれ独立に選択される基である。中でも、R¹⁰およびR¹¹は、それぞれ独立に、ハロゲン化アルキル基であることが好ましい。

【0037】

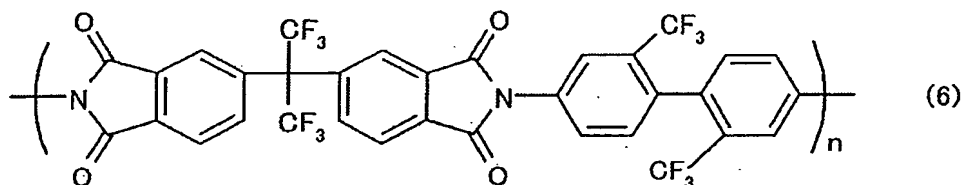
前記式(5)中、M1およびM2は、同一であるかまたは異なり、例えば、ハロゲン、C1-3アルキル基、C1-3ハロゲン化アルキル基、フェニル基、または、置換フェニル基である。前記ハロゲンとしては、例えば、フッ素、塩素、臭素およびヨウ素があげられる。また、前記置換フェニル基としては、例えば、ハロゲン、C1-3アルキル基、およびC1-3ハロゲン化アルキル基からなる群から選択される少なくとも一種の置換基を有する置換フェニル基があげられる。

【0038】

前記式(3)に示すポリイミドの具体例としては、例えば、下記式(6)で表されるもの等があげられる。

【0039】

【化 4】



さらに、前記ポリイミドとしては、例えば、前述のような骨格（繰返し単位）以外の酸二無水物やジアミンを、適宜共重合させたコポリマーがあげられる。

【 0 0 4 0 】

前記酸二無水物としては、例えば、芳香族テトラカルボン酸二無水物があげられる。前記芳香族テトラカルボン酸二無水物としては、例えば、ピロメリト酸二無水物、ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、複素環式芳香族テトラカルボン酸二無水物、2,2'-置換ビフェニルテトラカルボン酸二無水物等があげられる。

【 0 0 4 1 】

前記ピロメリト酸二無水物としては、例えば、ピロメリト酸二無水物、3,6-ジフェニルピロメリト酸二無水物、3,6-ビス(トリフルオロメチル)ピロメリト酸二無水物、3,6-ジブロモピロメリト酸二無水物、3,6-ジクロロピロメリト酸二無水物等があげられる。前記ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物としては、例えば、3,3',4,4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、2,3,3',4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、2,2',3,3'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物等があげられる。前記ナフタレンテトラカルボン酸二無水物としては、例えば、2,3,6,7-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、1,2,5,6-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、2,6-ジクロロ-ナフタレン-1,4,5,8-テトラカルボン酸二無水物等があげられる。前記複

素環式芳香族テトラカルボン酸二無水物としては、例えば、チオフェン-2, 3, 4, 5-テトラカルボン酸二無水物、ピラジン-2, 3, 5, 6-テトラカルボン酸二無水物、ピリジン-2, 3, 5, 6-テトラカルボン酸二無水物等があげられる。前記2, 2'-置換ビフェニルテトラカルボン酸二無水物としては、例えば、2, 2'-ジブromo-4, 4', 5, 5'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、2, 2'-ジクロロ-4, 4', 5, 5'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)-4, 4', 5, 5'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物等があげられる。

【0042】

また、前記芳香族テトラカルボン酸二無水物のその他の例としては、3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、ビス(2, 3-ジカルボキシフェニル)メタン二無水物、ビス(2, 5, 6-トリフルオロ-3, 4-ジカルボキシフェニル)メタン二無水物、2, 2'-ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)-1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフルオロプロパン二無水物、4, 4'-ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)-2, 2-ジフェニルプロパン二無水物、ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)エーテル二無水物、4, 4'-オキシジフタル酸二無水物、ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)スルホン酸二無水物、3, 3', 4, 4'-ジフェニルスルホンテトラカルボン酸二無水物、4, 4'-[4, 4'-イソプロピリデン-ジ(p-フェニレンオキシ)]ビス(フタル酸無水物)、N, N-(3, 4-ジカルボキシフェニル)-N-メチルアミン二無水物、ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)ジエチルシラン二無水物等があげられる。

【0043】

これらの中でも、前記芳香族テトラカルボン酸二無水物としては、2, 2'-置換ビフェニルテトラカルボン酸二無水物が好ましく、より好ましくは、2, 2'-ビス(トリハロメチル)-4, 4', 5, 5'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物であり、さらに好ましくは、2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)-4, 4', 5, 5'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物である。

【0044】

前記ジアミンとしては、例えば、芳香族ジアミンがあげられ、具体例としては、ベンゼンジアミン、ジアミノベンゾフェノン、ナフタレンジアミン、複素環式芳香族ジアミン、およびその他の芳香族ジアミンがあげられる。

【0045】

前記ベンゼンジアミンとしては、例えば、o-, m-およびp-フェニレンジアミン、2, 4-ジアミノトルエン、1, 4-ジアミノ-2-メトキシベンゼン、1, 4-ジアミノ-2-フェニルベンゼンおよび1, 3-ジアミノ-4-クロロベンゼンのようなベンゼンジアミンから成る群から選択されるジアミン等があげられる。前記ジアミノベンゾフェノンの例としては、2, 2'-ジアミノベンゾフェノン、および3, 3'-ジアミノベンゾフェノン等があげられる。前記ナフタレンジアミンとしては、例えば、1, 8-ジアミノナフタレン、および1, 5-ジアミノナフタレン等があげられる。前記複素環式芳香族ジアミンの例としては、2, 6-ジアミノピリジン、2, 4-ジアミノピリジン、および2, 4-ジアミノ-S-トリアジン等があげられる。

【0046】

また、前記芳香族ジアミンとしては、これらの他に、4, 4'-ジアミノビフェニル、4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、4, 4'-(9-フルオレニリデン)-ジアニリン、2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)-4, 4'-ジアミノビフェニル、3, 3'-ジクロロ-4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、2, 2'-ジクロロ-4, 4'-ジアミノビフェニル、2, 2', 5, 5'-テトラクロロベンジジン、2, 2'-ビス(4-アミノフェノキシフェニル)プロパン、2, 2'-ビス(4-アミノフェニル)プロパン、2, 2'-ビス(4-アミノフェニル)-1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフルオロプロパン、4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル、3, 4'-ジアミノジフェニルエーテル、1, 3-ビス(3-アミノフェノキシ)ベンゼン、1, 3-ビス(4-アミノフェノキシ)ベンゼン、1, 4-ビス(4-アミノフェノキシ)ベンゼン、4, 4'-ビス(4-アミノフェノキシ)ビフェニル、4, 4'-ビス(3-アミノフェノキシ)ビフェニル、2, 2'-ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]プロパン、2, 2'-ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェ

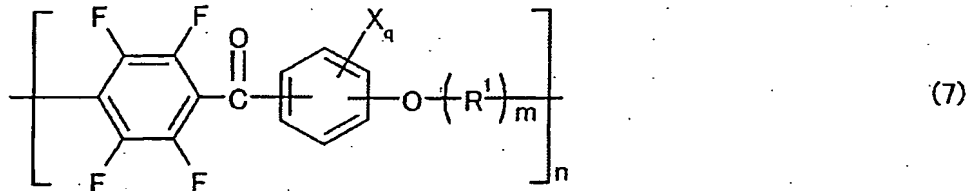
ニル]-1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフルオロプロパン、4, 4'-ジアミノジフェニルチオエーテル、4, 4'-ジアミノジフェニルスルホン等があげられる。

【0047】

前記ポリエーテルケトンとしては、例えば、特開2001-49110号公報に記載された、下記一般式(7)で表されるポリアリールエーテルケトンがあげられる。

【0048】

【化5】



10

前記式(7)中、Xは、置換基を表し、qは、その置換数を表す。Xは、例えば、ハロゲン原子、低級アルキル基、ハロゲン化アルキル基、低級アルコキシ基、または、ハロゲン化アルコキシ基であり、Xが複数の場合、それぞれ同一であるかまたは異なる。

【0049】

前記ハロゲン原子としては、例えば、フッ素原子、臭素原子、塩素原子およびヨウ素原子があげられ、これらの中でも、フッ素原子が好ましい。前記低級アルキル基としては、例えば、C1~6の直鎖または分岐鎖の低級アルキル基が好ましく、より好ましくはC1~4の直鎖または分岐鎖のアルキル基である。具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、および、tert-ブチル基が好ましく、特に好ましくは、メチル基およびエチル基である。前記ハロゲン化アルキル基としては、例えば、トリフルオロメチル基等の前記低級アルキル基のハロゲン化物があげられる。前記低級アルコキシ基としては、例えば、C1~6の直鎖または分岐鎖のアルコキシ基が好ましく、より好ましくはC1~4の直鎖または分岐鎖のアルコキシ基である。具体的には、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基、sec-ブトキシ基、および、tert-ブトキシ基が、さらに好ましく、特に好ましくはメトキシ基およびエトキシ基である。前記ハロゲン化アルコキシ基としては、例えば、トリフルオロメトキシ基等の前記低級アルコキシ基のハロゲン化物があげられる。

30

【0050】

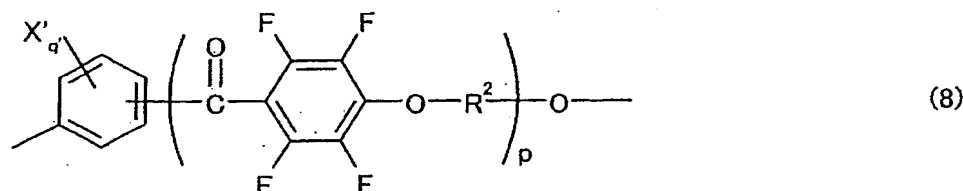
前記式(7)中、qは、0から4までの整数である。前記式(7)においては、q=0であり、かつ、ベンゼン環の両端に結合したカルボニル基とエーテルの酸素原子とが互いにパラ位に存在することが好ましい。

【0051】

また、前記式(7)中、R¹は、下記式(8)で表される基であり、mは、0または1の整数である。

【0052】

【化6】



40

前記式(8)中、X'は置換基を表し、例えば、前記式(7)におけるXと同様である。前記式(8)において、X'が複数の場合、それぞれ同一であるかまたは異なる。q'は、前記X'の置換数を表し、0から4までの整数であって、q'=0が好ましい。また、pは、0または1の整数である。

50

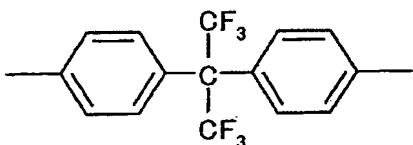
【0053】

前記式(8)中、R²は、2価の芳香族基を表す。この2価の芳香族基としては、例えば、o-、m-もしくはp-フェニレン基、または、ナフタレン、ビフェニル、アントラセン、o-、m-もしくはp-テルフェニル、フェナントレン、ジベンゾフラン、ビフェニルエーテル、もしくは、ビフェニルスルホンから誘導される2価の基等があげられる。これらの2価の芳香族基において、芳香族に直接結合している水素が、ハロゲン原子、低級アルキル基または低級アルコキシ基で置換されてもよい。これらの中でも、前記R²としては、下記式(9)～(15)からなる群から選択される芳香族基が好ましい。

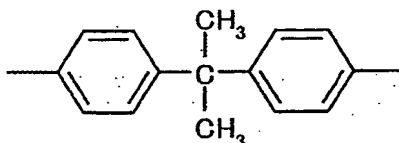
【0054】

【化7】

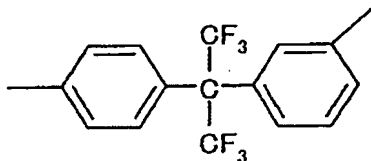
(9)



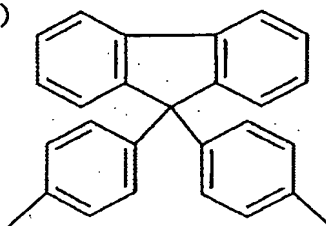
(10)



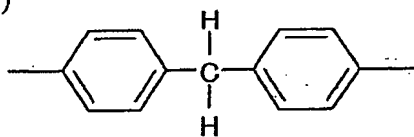
(11)



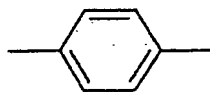
(12)



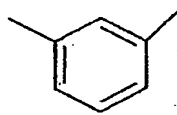
(13)



(14)



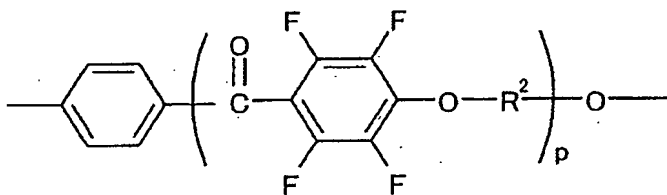
(15)



前記式(7)中、前記R¹としては、下記式(16)で表される基が好ましく、下記式(16)において、R²およびpは前記式(8)と同義である。

【0055】

【化8】



(16)

さらに、前記式(7)中、nは重合度を表し、例えば、2～5000の範囲であり、好ましくは、5～500の範囲である。また、その重合は、同じ構造の繰り返し単位からなるものであってもよく、異なる構造の繰り返し単位からなるものであってもよい。後者の場合には、繰り返し単位の重合形態は、ブロック重合であってもよいし、ランダム重合でもよい。

【0056】

さらに、前記式(7)で示されるポリアリールエーテルケトン末端は、p-テトラフルオロベンゾイレン基側がフッ素であり、オキシアルキレン基側が水素原子であることが好ましく、このようなポリアリールエーテルケトンは、例えば、下記一般式(17)で表すことができる。なお、下記式において、nは前記式(7)と同様の重合度を表す。

【0057】

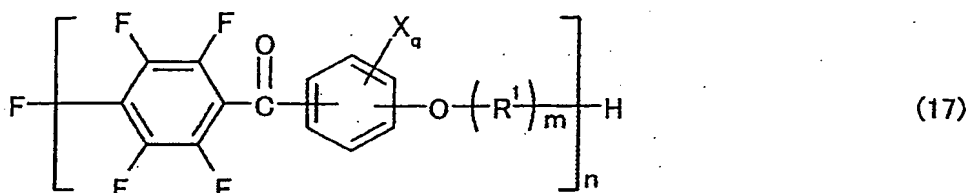
10

20

30

40

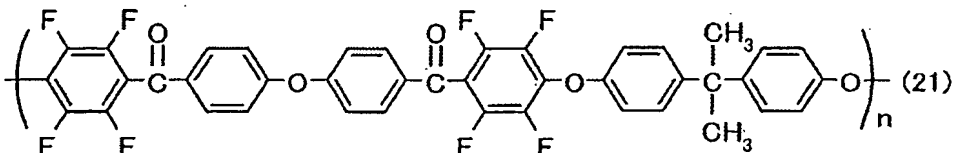
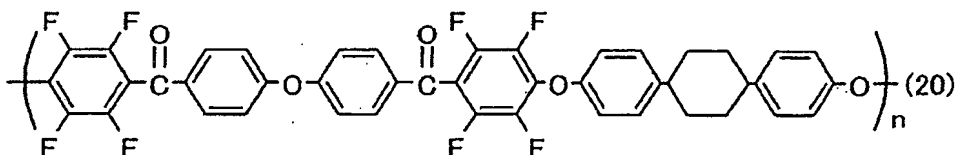
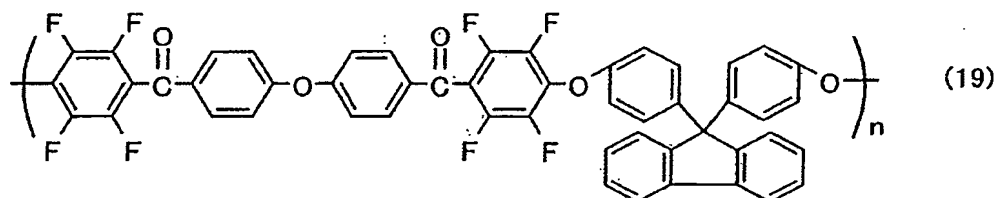
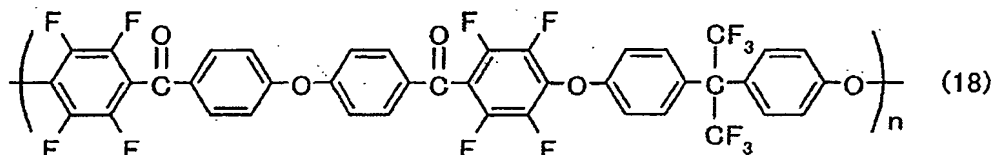
【化 9】



前記式(7)で示されるポリアリールエーテルケトン具体例としては、下記式(18)～(21)で表されるもの等があげられ、下記各式において、 n は、前記式(7)と同様の重合度を表す。

【0058】

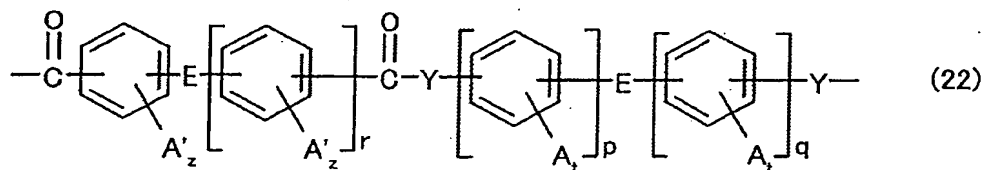
【化10】



また、これらの他に、前記ポリアミドまたはポリエステルとしては、例えば、特表平10-508048号公報に記載されるポリアミドやポリエステルがあげられ、それらの繰り返し単位は、例えば、下記一般式(22)で表すことができる。

【0059】

【化11】



前記式(22)中、 Y は、 O または NH である。また、 E は、例えば、共有結合、 C_2 アルキレン基、ハロゲン化 C_2 アルキレン基、 CH_2 基、 $C(CX_3)_2$ 基(ここで、 X はハロゲンまたは水素である。)、 CO 基、 O 原子、 S 原子、 SO_2 基、 $Si(R)_2$ 基、および、 $N(R)$ 基からなる群から選ばれる少なくとも一種の基であり、それぞれ同一でもよいし異なってもよい。前記 E において、 R は、 C_1 - 3 アルキル基および C_1 - 3 ハロゲン化アルキル基の少なくとも一種類であり、カルボニル官能基または Y 基に対してメタ位また

はパラ位にある。

【0060】

また、前記(22)中、AおよびA'は、置換基であり、tおよびzは、それぞれの置換数を表す。また、pは、0から3までの整数であり、qは、1から3までの整数であり、rは、0から3までの整数である。

【0061】

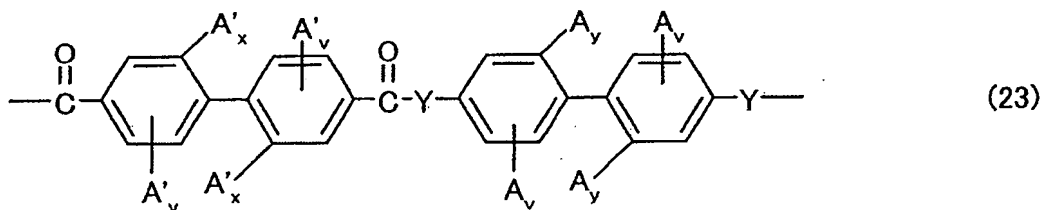
前記Aは、例えば、水素、ハロゲン、C1-3アルキル基、C1-3ハロゲン化アルキル基、OR(ここで、Rは、前記定義のものである。)で表されるアルコキシ基、アリール基、ハロゲン化等による置換アリール基、C1-9アルコシカルボニル基、C1-9アルキルカルボニルオキシ基、C1-12アリールオシカルボニル基、C1-12アリールカルボニルオキシ基およびその置換誘導体、C1-12アリールカルバモイル基、ならびに、C1-12アリールカルボニルアミノ基およびその置換誘導体からなる群から選択され、複数の場合、それぞれ同一であるかまたは異なる。前記A'は、例えば、ハロゲン、C1-3アルキル基、C1-3ハロゲン化アルキル基、フェニル基および置換フェニル基からなる群から選択され、複数の場合、それぞれ同一であるかまたは異なる。前記置換フェニル基のフェニル環上の置換基としては、例えば、ハロゲン、C1-3アルキル基、C1-3ハロゲン化アルキル基およびこれらの組み合わせがあげられる。前記tは、0から4までの整数であり、前記zは、0から3までの整数である。

【0062】

前記式(22)で表されるポリアミドまたはポリエステル繰り返し単位の中でも、下記一般式(23)で表されるものが好ましい。

【0063】

【化12】



前記式(23)中、A、A'およびYは、前記式(22)で定義したものであり、vは0から3の整数、好ましくは、0から2の整数である。xおよびyは、それぞれ0または1であるが、共に0であることはない。

【0064】

つぎに、透明高分子フィルムは、前述のように、その面内位相差($\Delta n d$)が、50 nm以下であればよく、好ましくは20 nm以下であり、より好ましくは10 nm以下である。なお、本発明において、面内位相差($\Delta n d$)、厚み方向位相差(Rth)および複屈折率(Δn)は、下記の式で表される。前記透明高分子フィルムが単層の場合、その面内位相差($\Delta n d$)の下限は0を超える値である。したがって、前記透明高分子フィルムの面内位相差($\Delta n d$)の範囲は、50 nm以下0 nmを超える範囲が好ましく、より好ましくは20 nm以下0 nmを超える範囲であり、さらに好ましくは10 nm以下0 nmを超える範囲である。また、下記式において、 n_x 、 n_y および n_z は、前述の複屈折層の場合と同様である。すなわち、 n_y および n_z は、それぞれ、前記透明高分子フィルムにおける、X軸方向、Y軸方向およびZ軸方向の屈折率を示す。前記X軸方向は、前記透明高分子フィルムの面内方向において最大の屈折率を示す軸方向であり、前記Y軸方向は、前記面内における前記X軸方向に対して垂直な軸方向であり、前記Z軸方向は、前記X軸方向および前記Y軸方向に垂直な厚み方向を示す。dは、フィルムの厚みである。

$$\Delta n d = (n_x - n_y) \cdot d$$

$$Rth = [(n_x + n_y) / 2 - n_z] \cdot d$$

$$\Delta n = [(n_x + n_y) / 2 - n_z] \cdot d / d$$

前記透明高分子フィルムの形成材料は、特に制限されず、透明性に優れるポリマーが好ましく、また、後述するような延伸処理や収縮処理に適していることから、熱可塑性樹脂が好ましい。具体的には、例えば、トリアセチルセルロース（TAC）等のアセテート樹脂、ポリエステル樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、ポリスルホン樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂、ポリオレフィン樹脂、アクリル樹脂、ポリノルボルネン樹脂（例えば、商品名「ARTON」（JSR社製）、商品名「ZEONOR」、商品名「ZEONEX」（日本ゼオン社製）等）、セルロース樹脂、ポリアリレート樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリビニルアルコール樹脂、ポリ塩化ビニル樹脂、ポリ塩化ビニリデン樹脂、ポリアクリル樹脂や、これらの混合物等があげられる。また、液晶ポリマー等も使用できる。さらに、例えば、特開平2001-343529号公報（WO 01/37007号）に記載されているような、側鎖に置換イミド基または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂と、側鎖に置換フェニル基または非置換フェニル基とニトリル基とを有する熱可塑性樹脂との混合物等も使用できる。具体例としては、例えば、イソブテンとN-メチレンマレイミドからなる交互共重合体と、アクリロニトリル・スチレン共重合体とを有する樹脂組成物等である。これらの形成材料の中でも、例えば、透明フィルムを形成した際の複屈折率を、相対的により一層低く設定できる材料が好ましく、具体的には、前述の側鎖に置換イミド基または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂と、側鎖に置換フェニル基または非置換フェニル基とニトリル基とを有する熱可塑性樹脂との混合物が好ましい。前記の樹脂のなかで、トリアセチルセルロース（TAC）等のセルロース系ポリマーフィルム、ノルボルネン系ポリマーフィルム（「ARTON」（JSR）、「ZEONOR」、「ZEONEX」（日本ゼオン）等）が代表的なものとして挙げられる。

【0065】

前記透明高分子フィルムの厚さは、例えば、10～1000 μ m程度であるが、好ましくは20～500 μ m、より好ましくは30～100 μ mである。

【0066】

本発明の透明高分子フィルム層は、予め本発明の面内位相差（ $\Delta n d$ ）を有する透明高分子フィルムを使用して形成してもよいし、前記所定の範囲になくても、透明高分子を延伸若しくは収縮などの処理を行って、前記所定の範囲にしてもよい。

【0067】

つぎに、前記透明高分子フィルムに、前記非液晶ポリマーの溶液をフィルム状に塗工し、前記溶液中の溶媒を蒸発除去して複屈折層を形成する。

【0068】

前記塗工する溶液の溶媒は、特に制限されず、例えば、クロロホルム、ジクロロメタン、四塩化炭素、ジクロロエタン、テトラクロロエタン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン、クロロベンゼン、オルソジクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類；フェノール、バラクロロフェノール等のフェノール類；ベンゼン、トルエン、キシレン、メトキシベンゼン、1,2-ジメトキシベンゼン等の芳香族炭化水素類；アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン、シクロペンタノン、2-ピロリドン、N-メチル-2-ピロリドン等のケトン系溶媒；酢酸エチル、酢酸ブチル等のエステル系溶媒； α -ブチルアルコール、グリセリン、エチレングリコール、トリエチレングリコール、エチレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールジメチルエーテル、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、2-メチル-2,4-ペンタジオールのようなアルコール系溶媒；ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミドのようなアミド系溶媒；アセトニトリル、ブチロニトリルのようなニトリル系溶媒；ジエチルエーテル、ジブチルエーテル、テトラヒドロフランのようなエーテル系溶媒；あるいは二硫化炭素、エチルセルソルブ、ブチルセルソルブ等があげられる。これらの溶媒は、一種類でもよいし、二種類以上を併用してもよい。

【0069】

前記塗工溶液は、例えば、必要に応じて、さらに、安定剤、可塑剤、金属類等の種々の添加剤を配合してもよい。

【0070】

また、前記塗工溶液は、異なる他の樹脂を含有してもよい。前記他の樹脂としては、例えば、各種汎用樹脂、エンジニアリングプラスチック、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂等があげられる。

【0071】

前記汎用樹脂としては、例えば、ポリエチレン (PE)、ポリプロピレン (PP)、ポリスチレン (PS)、ポリメチルメタクリレート (PMMA)、ABS樹脂、およびAS樹脂等があげられる。前記エンジニアリングプラスチックとしては、例えば、ポリアセテート (POM)、ポリカーボネート (PC)、ポリアミド (PA: ナイロン)、ポリエチレンテレフタレート (PET)、およびポリブチレンテレフタレート (PBT) 等があげられる。前記熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリフェニレンスルフィド (PPS)、ポリエーテルスルホン (PES)、ポリケトン (PK)、ポリイミド (PI)、ポリシクロヘキサジメタノールテレフタレート (PCT)、ポリアリレート (PAR)、および液晶ポリマー (LCP) 等があげられる。前記熱硬化性樹脂としては、例えば、エポキシ樹脂、フェノールノボラック樹脂等があげられる。

【0072】

このように、前記他の樹脂等を前記塗工溶液に配合する場合、その配合量は、前記ポリマー材料に対して、例えば、0～50質量%であり、好ましくは、0～30質量%である。

【0073】

前記溶液の塗工方法としては、例えば、スピンコート法、ロールコート法、フローコート法、プリント法、ディップコート法、流延成膜法、バーコート法、グラビア印刷法等があげられる。また、塗工に際しては、必要に応じて、ポリマー層の重畳方式も採用できる。

【0074】

塗工後、例えば、自然乾燥、風乾、加熱乾燥 (例えば、60～250℃) により、前記溶液中の溶媒を蒸発除去させ、フィルム状の複屈折層を形成する。この複屈折層は、前記式 (1) の条件を満たす。前記複屈折層の厚みは、特に制限されないが、液晶表示装置の薄型化、視角補償およびフィルムの均質性等の観点から、例えば、0.1～50μm、好ましくは0.5～30μm、より好ましくは1～20μmの範囲である。

【0075】

本発明の複屈折層は、前記非液晶性ポリマー溶液の溶媒蒸発除去による層形成工程以外の処理をしなければ、光学的に一軸の特性 ($n_x = n_y > n_z$) のものが形成されるが、例えば、以下に示すような処理を行えば、面内に屈折率の差 ($n_x > n_y$) を持たせることができ、光学的二軸性 ($n_x > n_y > n_z$) となる。複屈折層の面内に屈折率の差を持たせる方法としては、例えば、以下の方法がある。まず、一方向に面内収縮性を有する透明高分子フィルムを用い、その上に前記溶液を塗工し乾燥することにより、前記透明高分子フィルムの面内収縮性を利用して、形成される複屈折層に面内の屈折率差を持たせることができる。また、一方向に応力を加えた透明高分子フィルムの上に前記溶液を塗工したり、塗工された溶液に一方向から風を吹き付けたりしながら、複屈折層を形成することにより、面内に屈折率の差を持たせることもできる。その他、異方性をもつ透明高分子フィルムの上に前記溶液を塗工して複屈折層を形成することにより、面内に屈折率の差を持たせることもできる。また、透明高分子フィルム層の上に複屈折層を形成後、この積層体を延伸することにより、前記複屈折層の面内に屈折率の差を持たせることができる。なお、これらの方法を組み合わせてもよい。

【0076】

このようにして、透明高分子フィルム層と、非液晶性ポリマーから形成された複屈折層とが積層された光学フィルムであって、前記式 (1) の条件を満たし、かつ前記透明高分子フィルム層の面内位相差が50nm以下である本発明の光学フィルムが得られる。なお、本発明の光学フィルムは、その他の製造方法により製造してもよい。例えば、複屈折層

を、Tダイ押し出し法などにより、予めフィルムとして形成しておき、これを透明高分子フィルムに貼着して光学フィルムを形成してもよい。前記貼着手段としては、例えば、粘着剤や接着剤を使用する方法がある。

【0077】

本発明において、複屈折層は、透明高分子フィルム層の一方の表面に形成されていてもよく、また両面に形成されていてもよい。また、前記複屈折層は、単層でもよく単一形成材料若しくは複数の形成材料による多層構造でもよい。

【0078】

本発明の光学フィルムは、さらに、接着剤層および粘着剤層の少なくとも一方を有することが好ましい。これによって、本発明の光学フィルムと、他の光学層や液晶セル等の他部材との接着が容易になるとともに、本発明の光学フィルムの剥離を防止することができるからである。したがって、前記接着剤層や粘着剤層は、光学フィルムの最外層に積層されることが好ましく、また、光学フィルムの方の最外層でもよいし、両方の最外層に積層されてもよい。

【0079】

前記接着層の材料としては、特に制限されないが、例えば、アクリル系、ビニルアルコール系、シリコン系、ポリエステル系、ポリウレタン系、ポリエーテル系等のポリマー製感圧接着剤や、ゴム系感圧接着剤等が使用できる。また、これらの材料に、微粒子を含有させて光拡散性を示す層としてもよい。これらの中でも、例えば、吸湿性や耐熱性に優れる材料が好ましい。このような性質であれば、例えば、液晶表示装置に使用した場合に、吸湿による発泡や剥離、熱膨張差等による光学特性の低下や、液晶セルの反り等を防止でき、高品質で耐久性にも優れる表示装置となる。

【0080】

本発明の光学フィルムは、前述のように、単独で使用してもよいし、必要に応じて他の光学部材と組合せて積層体として、各種光学用途に供することができる。具体的には、光学補償用部材として、特に視覚補償部材として有用である。前記他の光学部材としては、特に制限されないが、例えば、以下に示す偏光子等があげられる。

【0081】

本発明の偏光板は、光学フィルムと偏光子とを含む積層偏光板であって、前記光学フィルムが、前記本発明の光学フィルムであることを特徴する。

【0082】

このような偏光板の構成は、前記本発明の光学フィルムを有していれば、特に制限されないが、例えば、図1または図2に示すようなものが例示できる。図1および図2は、それぞれ本発明の偏光板の例を示す断面図であり、両図において同一部分には同一符号を付している。なお、本発明の偏光板は、以下の構成に限定されるものではなく、さらに他の光学部材等を含んでいてもよい。

【0083】

図1に示す偏光板は、前記本発明の光学フィルム1、偏光子2および透明保護層3を有し、偏光子2の一方の面（図において上の面）に光学フィルム1が積層され、その他の面（図において下の面）に透明保護層3が積層されている。なお、光学フィルム1は、前述のように複屈折層と透明高分子フィルム層との積層体であるため、いずれの表面が偏光子2に面してもよいが、前記透明高分子フィルム層が透明保護層3を兼ねる場合は、透明高分子フィルム層が偏光子に接することが好ましい。また、光学フィルム1、偏光子2および透明保護層3は、例えば、それぞれの層間に粘着層や接着層を形成して積層してもよい。

【0084】

図2に示す偏光板は、前記本発明の光学フィルム1、偏光子2および二つの透明保護層3を有し、偏光子2の両面に透明保護層3がそれぞれ積層されており、一方の透明保護層3にさらに光学フィルム1が積層されている。なお、光学フィルム1は、前述のように複屈折層と透明高分子フィルムとの積層体であるため、いずれの表面が透明保護層3に面し

てもよい。

【0085】

なお、透明保護層は、同図に示すように偏光子の両側に積層してもよいし、いずれか一方の面のみに積層してもよい。また、両面に積層する場合には、例えば、同じ種類の透明保護層を使用してもよいし、異なる種類の透明保護層を使用してもよい。

【0086】

前記偏光子としては、特に制限されず、例えば、従来公知の方法により、各種フィルムに、ヨウ素や二色性染料等の二色性物質を吸着させて染色し、架橋、延伸、乾燥することによって調製したもの等が使用できる。この中でも、自然光を入射させると直線偏光を透過するフィルムが好ましく、光透過率や偏光度に優れるものが好ましい。前記二色性物質を吸着させる各種フィルムとしては、例えば、ポリビニルアルコール（PVA）系フィルム、部分ホルマール化PVA系フィルム、エチレン・酢酸ビニル共重合体系部分ケン化フィルム、セルロース系フィルム等の親水性高分子フィルム等があげられ、これらの他にも、例えば、PVAの脱水処理物やポリ塩化ビニルの脱塩酸処理物等のポリエン配向フィルム等も使用できる。これらの中でも、好ましくはPVA系フィルムである。また、前記偏光フィルムの厚みは、通常、1～80 μmの範囲であるが、これには限定されない。

【0087】

前記透明保護層としては、特に制限されず、従来公知の透明フィルムを使用できるが、例えば、透明性、機械的強度、熱安定性、水分遮断性、等方性などに優れるものが好ましい。このような透明保護層の材質の具体例としては、トリアセチルセルロール等のセルロース系樹脂や、ポリエステル系、ポリカーボネート系、ポリアミド系、ポリイミド系、ポリエーテルスルホン系、ポリスルホン系、ポリスチレン系、ポリノルボルネン系、ポリオレフィン系、アクリル系、アセテート系等の透明樹脂等があげられる。また、前記アクリル系、ウレタン系、アクリルウレタン系、エポキシ系、シリコン系等の熱硬化型樹脂または紫外線硬化型樹脂等もあげられる。この中でも、偏光特性や耐久性の点から、表面をアルカリ等でケン化処理したTACフィルムが好ましい。

【0088】

また、透明保護層として、特開2001-343529号公報（WO01/37007）に記載のポリマーフィルムがあげられる。このポリマー材料としては、例えば、側鎖に置換または非置換のイミド基を有する熱可塑性樹脂と、側鎖に置換または非置換のフェニル基ならびにニトリル基を有する熱可塑性樹脂を含有する樹脂組成物が使用でき、例えば、イソブテンとN-メチレンマレイミドからなる交互共重合体と、アクリロニトリル・スチレン共重合体とを有する樹脂組成物があげられる。なお、前記ポリマーフィルムは、例えば、前記樹脂組成物の押出成形物であってもよい。

【0089】

また、前記透明保護層は、例えば、色付きが無いことが好ましい。具体的には、下記式で表されるフィルム厚み方向の位相差値（Rth）が、-90 nm～+75 nmの範囲であることが好ましく、より好ましくは-80 nm～+60 nmであり、特に好ましくは-70 nm～+45 nmの範囲である。前記位相差値が-90 nm～+75 nmの範囲であれば、十分に保護フィルムに起因する偏光板の着色（光学的な着色）を解消できる。なお、下記式において、nx, ny, nzは、前述と同様であり、dは、その膜厚を示す。

$$Rth = [(nx + ny) / 2 - nz] \cdot d$$

また、前記透明保護層は、さらに光学補償機能を有するものでもよい。このように光学補償機能を有する透明保護層としては、例えば、液晶セルにおける位相差に基づく視認角の変化が原因である、着色等の防止や、良視認の視野角の拡大等を目的とした公知のものが使用できる。具体的には、例えば、前述した透明樹脂を一軸延伸または二軸延伸した各種延伸フィルムや、液晶ポリマー等の配向フィルム、透明基材上に液晶ポリマー等の配向層を配置した積層体等があげられる。これらの中でも、良視認の広い視野角を達成できることから、前記液晶ポリマーの配向フィルムが好ましく、特に、ディスコティック系やネマチック系の液晶ポリマーの傾斜配向層から構成される光学補償層を、前述のトリアセチ

ルセルロースフィルム等で支持した光学補償位相差板が好ましい。このような光学補償位相差板としては、例えば、富士写真フィルム株式会社製「WVフィルム」等の市販品があげられる。なお、前記光学補償位相差板は、前記位相差フィルムやトリアセチルセルロースフィルム等のフィルム支持体を2層以上積層させることによって、位相差等の光学特性を制御したもの等でもよい。

【0090】

前記透明保護層の厚みは、特に制限されず、例えば、位相差や保護強度等に応じて適宜決定できるが、通常、 $500\mu\text{m}$ 以下であり、好ましくは $5\sim300\mu\text{m}$ 、より好ましくは $5\sim150\mu\text{m}$ の範囲である

前記透明保護層は、例えば、偏光フィルムに前記各種透明樹脂を塗布する方法、前記偏光フィルムに前記透明樹脂製フィルムや前記光学補償位相差板等を積層する方法等の従来公知の方法によって適宜形成でき、また市販品を使用することもできる。

【0091】

また、前記透明保護層は、さらに、例えば、ハードコート処理、反射防止処理、スティッキングの防止や拡散、アンチグレア等を目的とした処理等が施されたものでもよい。前記ハードコート処理とは、偏光板表面の傷付き防止等を目的とし、例えば、前記透明保護層の表面に、硬化型樹脂から構成される、硬度や滑り性に優れた硬化被膜を形成する処理である。前記硬化型樹脂としては、例えば、シリコン系、ウレタン系、アクリル系、エポキシ系等の紫外線硬化型樹脂等が使用でき、前記処理は、従来公知の方法によって行うことができる。スティッキングの防止は、隣接する層との密着防止を目的とする。前記反射防止処理とは、偏光板表面での外光の反射防止を目的とし、従来公知の反射防止層等の形成により行うことができる。

【0092】

前記アンチグレア処理とは、偏光板表面において外光が反射することによる、偏光板透過光の視認妨害を防止すること等を目的とし、例えば、従来公知の方法によって、前記透明保護層の表面に、微細な凹凸構造を形成することによって行うことができる。このような凹凸構造の形成方法としては、例えば、サンドブラスト法やエンボス加工等による粗面化方式や、前述のような透明樹脂に透明微粒子を配合して前記透明保護層を形成する方式等があげられる。

【0093】

前記透明微粒子としては、例えば、シリカ、アルミナ、チタニア、ジルコニア、酸化錫、酸化インジウム、酸化カドミウム、酸化アンチモン等があげられ、この他にも導電性を有する無機系微粒子や、架橋または未架橋のポリマー粒状物等から構成される有機系微粒子等を使用することもできる。前記透明微粒子の平均粒径は、特に制限されないが、例えば、 $0.5\sim20\mu\text{m}$ の範囲である。また、前記透明微粒子の配合割合は、特に制限されないが、一般に、前述のような透明樹脂100質量部あたり2～70質量部の範囲が好ましく、より好ましくは $5\sim50$ 質量部の範囲である。

【0094】

前記透明微粒子を配合したアンチグレア層は、例えば、透明保護層そのものとして使用することもでき、また、透明保護層表面に塗工層等として形成されてもよい。さらに、前記アンチグレア層は、偏光板透過光を拡散して視角を拡大するための拡散層（視覚補償機能等）を兼ねるものであってもよい。

【0095】

なお、前記反射防止層、スティッキング防止層、拡散層、アンチグレア層等は、前記透明保護層とは別個に、例えば、これらの層を設けたシート等から構成される光学層として、偏光板に積層してもよい。

【0096】

各構成物同士（光学フィルム、偏光子、透明保護層等）の積層方法は、特に制限されず、従来公知の方法によって行うことができる。一般には、前述と同様の粘着剤や接着剤等が使用でき、その種類は、前記各構成物の材質等によって適宜決定できる。前記接着剤と

10

20

30

40

50

としては、例えば、アクリル系、ビニルアルコール系、シリコン系、ポリエステル系、ポリウレタン系、ポリエーテル系等のポリマー製接着剤や、ゴム系接着剤等があげられる。また、グルタルアルデヒド、メラミン、シュウ酸等のビニルアルコール系ポリマーの水溶性架橋剤等から構成される接着剤等も使用できる。前述のような粘着剤、接着剤は、例えば、湿度や熱の影響によっても剥がれ難く、光透過率や偏光度にも優れる。具体的には、前記偏光子がPVA系フィルムの場合、例えば、接着処理の安定性等の点から、PVA系接着剤が好ましい。これらの接着剤や粘着剤は、例えば、そのまま偏光子や透明保護層の表面に塗布してもよいし、前記接着剤や粘着剤から構成されたテープやシートのような層を前記表面に配置してもよい。また、例えば、水溶液として調製した場合、必要に応じて、他の添加剤や、酸等の触媒を配合してもよい。なお、前記接着剤を塗布する場合は、例えば、前記接着剤水溶液に、さらに、他の添加剤や、酸等の触媒を配合してもよい。このような接着層の厚みは、特に制限されないが、例えば、1nm～500nmであり、好ましくは10nm～300nmであり、より好ましくは20nm～100nmである。特に限定されず、例えば、アクリル系ポリマーやビニルアルコール系ポリマー等の接着剤等を使用した従来公知の方法が採用できる。また、湿度や熱等によっても剥がれにくく、光透過率や偏光度に優れる偏光板を形成できることから、さらに、グルタルアルデヒド、メラミン、シュウ酸等のPVA系ポリマーの水溶性架橋剤を含む接着剤が好ましい。これらの接着剤は、例えば、その水溶液を前記各構成物表面に塗工し、乾燥すること等によって使用できる。前記水溶液には、例えば、必要に応じて、他の添加剤や、酸等の触媒も配合できる。これらの中でも、前記接着剤としては、PVAフィルムとの接着性に優れる点から、PVA系接着剤が好ましい。

10

20

30

40

50

【0097】

また、本発明の光学フィルムは、前述のような偏光子の他にも、例えば、各種位相差板、拡散制御フィルム、輝度向上フィルム等、従来公知の光学部材と組合せて使用することもできる。前記位相差板としては、例えば、ポリマーフィルムを一軸延伸または二軸延伸したもの、Z軸配向処理したもの、液晶性高分子の塗工膜等があげられる。前記拡散制御フィルムとしては、例えば、拡散、散乱、屈折を利用したフィルムがあげられ、これらは、例えば、視野角の制御や、解像度に関わるギラツキや散乱光の制御等に使用することができる。前記輝度向上フィルムとしては、例えば、コレステリック液晶の選択反射と1/4波長板($\lambda/4$ 板)とを用いた輝度向上フィルムや、偏光方向による異方性散乱を利用した散乱フィルム等が使用できる。また、前記光学フィルムは、例えば、ワイヤーグリッド型偏光子と組合せることもできる。

【0098】

本発明の偏光板は、実用に際して、前記本発明の光学フィルムの他に、さらに他の光学層を含んでもよい。前記光学層としては、例えば、以下に示すような偏光板、反射板、半透過反射板、輝度向上フィルム等、液晶表示装置等の形成に使用される、従来公知の各種光学層があげられる。これらの光学層は、一種類でもよいし、二種類以上を併用してもよく、また、一層でもよいし、二層以上を積層してもよい。このような光学層をさらに含む積層偏光板は、例えば、光学補償機能を有する一体型偏光板として使用することが好ましく、例えば、液晶セル表面に配置する等、各種画像表示装置への使用に適している。

【0099】

以下に、このような一体型偏光板について説明する。

【0100】

まず、反射型偏光板または半透過反射型偏光板の一例について説明する。前記反射型偏光板は、本発明の積層偏光板にさらに反射板が、前記半透過反射型偏光板は、本発明の積層偏光板にさらに半透過反射板が、それぞれ積層されている。

【0101】

前記反射型偏光板は、通常、液晶セルの裏側に配置され、視認側(表示側)からの入射光を反射させて表示するタイプの液晶表示装置(反射型液晶表示装置)等可以使用できる。このような反射型偏光板は、例えば、バックライト等の光源の内蔵を省略できるため、液

晶表示装置の薄型化を可能にする等の利点を有する。

【0102】

前記反射型偏光板は、例えば、前記弾性率を示す偏光板の片面に、金属等から構成される反射板を形成する方法等、従来公知の方法によって作製できる。具体的には、例えば、前記偏光板における透明保護層の片面（露出面）を、必要に応じてマット処理し、前記面に、アルミニウム等の反射性金属からなる金属箔や蒸着膜を反射板として形成した反射型偏光板等があげられる。

【0103】

また、前述のように各種透明樹脂に微粒子を含有させて表面を微細凹凸構造とした透明保護層の上に、その微細凹凸構造を反映させた反射板を形成した、反射型偏光板等もあげられる。その表面が微細凹凸構造である反射板は、例えば、入射光を乱反射により拡散させ、指向性やギラギラした見栄えを防止し、明暗のムラを抑制できるという利点を有する。このような反射板は、例えば、前記透明保護層の凹凸表面に、真空蒸着方式、イオンプレーティング方式、スパッタリング方式等の蒸着方式やメッキ方式等、従来公知の方法により、直接、前記金属箔や金属蒸着膜として形成することができる。

【0104】

また、前述のように偏光板の透明保護層に前記反射板を直接形成する方式に代えて、反射板として、前記透明保護フィルムのような適当なフィルムに反射層を設けた反射シート等を使用してもよい。前記反射板における前記反射層は、通常、金属から構成されるため、例えば、酸化による反射率の低下防止、ひいては初期反射率の長期持続や、透明保護層の別途形成を回避する点等から、その使用形態は、前記反射層の反射面が前記フィルムや偏光板等で被覆された状態であることが好ましい。

【0105】

一方、前記半透過型偏光板は、前記反射型偏光板において、反射板に代えて、半透過型の反射板を有するものである。前記半透過型反射板としては、例えば、反射層で光を反射し、かつ、光を透過するハーフミラー等があげられる。

【0106】

前記半透過型偏光板は、通常、液晶セルの裏側に設けられ、液晶表示装置等を比較的明るい雰囲気中使用する場合には、視認側（表示側）からの入射光を反射して画像を表示し、比較的暗い雰囲気においては、半透過型偏光板のバックサイドに内蔵されているバックライト等の内蔵光源を使用して画像を表示するタイプの液晶表示装置等に使用できる。すなわち、前記半透過型偏光板は、明るい雰囲気下では、バックライト等の光源使用のエネルギーを節約でき、一方、比較的暗い雰囲気下においても、前記内蔵光源を用いて使用できるタイプの液晶表示装置等の形成に有用である。

【0107】

つぎに、本発明の偏光板に、さらに輝度向上フィルムが積層された偏光板の一例を説明する。

【0108】

前記輝度向上フィルムとしては、特に限定されず、例えば、誘電体の多層薄膜や、屈折率異方性が相違する薄膜フィルムの多層積層体のような、所定偏光軸の直線偏光を透過して、他の光は反射する特性を示すもの等が使用できる。このような輝度向上フィルムとしては、例えば、3M社製の商品名「D-BEF」等があげられる。また、コレステリック液晶層、特にコレステリック液晶ポリマーの配向フィルムや、その配向液晶層をフィルム基材上に支持したもの等が使用できる。これらは、左右一方の円偏光を反射して、他の光は透過する特性を示すものであり、例えば、日東電工社製の商品名「PCF350」、Merck社製の商品名「Transmax」等があげられる。

【0109】

以上のような本発明の各種偏光板は、例えば、本発明の偏光板と、さらに2層以上の光学層とを積層した光学部材であってもよい。

【0110】

このように2層以上の光学層を積層した光学部材は、例えば、液晶表示装置等の製造過程において、順次別個に積層する方式によっても形成できるが、予め積層した光学部材として使用すれば、例えば、品質の安定性や組立作業性等に優れ、液晶表示装置等の製造効率を向上できるという利点がある。なお、積層には、前述と同様に、粘着層等の各種接着手段を用いることができる。

【0111】

前述のような各種偏光板は、例えば、液晶セル等の他の部材への積層が容易になることから、さらに粘着剤層や接着剤層を有していることが好ましく、これらは、前記偏光板の片面または両面に配置することができる。前記粘着層の材料としては、特に制限されず、アクリル系ポリマー等の従来公知の材料が使用でき、特に、吸湿による発泡や剥離の防止、熱膨張差等による光学特性の低下や液晶セルの反り防止、ひいては高品質で耐久性に優れる液晶表示装置の形成性等の点より、例えば、吸湿率が低くて耐熱性に優れる粘着層となることが好ましい。また、微粒子を含有して光拡散性を示す粘着層等でもよい。前記偏光板表面への前記粘着剤層の形成は、例えば、各種粘着材料の溶液または熔融液を、流延や塗工等の展開方式により、前記偏光板の所定の面に直接添加して層を形成する方式や、同様にして後述するセパレータ上に粘着剤層を形成させて、それを前記偏光板の所定面に移着する方式等によって行うことができる。なお、このような層は、偏光板のいずれの表面に形成してもよく、例えば、偏光板における前記位相差板の露出面に形成してもよい。

10

【0112】

このように偏光板に設けた粘着剤層等の表面が露出する場合は、前記粘着層を実用に供するまでの間、汚染防止等を目的として、セパレータによって前記表面をカバーすることが好ましい。このセパレータは、前記透明保護フィルム等のような適当なフィルムに、必要に応じて、シリコン系、長鎖アルキル系、フッ素系、硫化モリブデン等の剥離剤による剥離コートを一層以上設ける方法等によって形成できる。

20

【0113】

前記粘着剤層等は、例えば、単層体でもよいし、積層体でもよい。前記積層体としては、例えば、異なる組成や異なる種類の単層を組合せた積層体を使用することもできる。また、前記偏光板の両面に配置する場合は、例えば、それぞれ同じ粘着剤層でもよいし、異なる組成や異なる種類の粘着剤層であってもよい。

30

【0114】

前記粘着剤層の厚みは、例えば、偏光板の構成等に応じて適宜に決定でき、一般には、 $1 \sim 500 \mu\text{m}$ である。

【0115】

前記粘着剤層を形成する粘着剤としては、例えば、光学的透明性に優れ、適度な濡れ性、凝集性や接着性の粘着特性を示すものが好ましい。具体的な例としては、アクリル系ポリマーやシリコン系ポリマー、ポリエステル、ポリウレタン、ポリエーテル、合成ゴム等のポリマーを適宜ベースポリマーとして調製された粘着剤等があげられる。

【0116】

前記粘着剤層の粘着特性の制御は、例えば、前記粘着剤層を形成するベースポリマーの組成や分子量、架橋方式、架橋性官能基の含有割合、架橋剤の配合割合等によって、その架橋度や分子量を調節するというような、従来公知の方法によって適宜行うことができる。

40

【0117】

以上のような本発明の光学フィルムや偏光板、各種光学部材（光学層を積層した各種偏光板）を形成する偏光フィルム、透明保護層、光学層、粘着剤層等の各層は、例えば、サリチル酸エステル系化合物、ベンゾフェノン系化合物、ベンゾトリアゾール系化合物、シアノアクリレート系化合物、ニッケル錯塩系化合物等の紫外線吸収剤で適宜処理することによって、紫外線吸収能を持たせたものでもよい。

【0118】

本発明の光学フィルムや偏光板は、前述のように、液晶表示装置等の各種装置の形成に

50

使用することが好ましく、例えば、本発明の光学フィルムや偏光板を液晶セルの片側または両側に配置して液晶パネルとし、反射型や半透過型、あるいは透過・反射両用型等の液晶表示装置に用いることができる。

【0119】

液晶表示装置を形成する前記液晶セルの種類は、任意で選択でき、例えば、STN (Super Twisted Nematic) セル、TN (Twisted Nematic) セル、IPS (In-Plane Switching) セル、VA (Vertical Aligned) セル、OCB (Optically Aligned Birefringence) セル、HAN (Hybrid Aligned Nematic) セル、ASM (Axially Symmetric Aligned Microcell) セル、強誘電・反強誘電セル及びこれらに規則正しい配向分割を行ったもの、ランダムな配向分割を行った物等の各種のセルが含まれる。これらの中でも、本発明の光学フィルムや偏光板は、特にVAセルおよびOCBセルの光学補償に非常に優れているので、VAモードおよびOCBモードの液晶表示装置用の視角補償フィルムとして非常に有用である。

【0120】

また、前記液晶セルは、通常、対向する液晶セル基板の間隙に液晶が注入された構造であって、前記液晶セル基板としては、特に制限されず、例えば、ガラス基板やプラスチック基板が使用できる。なお、前記プラスチック基板の材質としては、特に制限されず、従来公知の材料があげられる。

【0121】

また、液晶セルの両面に偏光板や光学部材を設ける場合、それらは同じ種類のものでもよいし、異なってもよい。さらに、液晶表示装置の形成に際しては、例えば、プリズムアレイシートやレンズアレイシート、光拡散板やバックライト等の適当な部品を、適当な位置に1層または2層以上配置することができる。

【0122】

さらに、本発明の液晶表示装置は、液晶パネルを含み、前記液晶パネルとして、本発明の液晶パネルを使用する以外は、特に制限されない。光源を含む場合、特に制限されないが、例えば、光のエネルギーが有効に使用できることから、例えば、偏光を出射する平面光源であることが好ましい。

【0123】

図3の断面図に、本発明の液晶パネルの一例を示す。図示のように、液晶パネルは、液晶セル21、光学フィルム1、偏光子2および透明保護層3を有しており、液晶セル21の一方の面に光学フィルム1が積層されており、光学の他方の面に、偏光子2および透明保護層が、この順序で積層されている。前記液晶セルは、二枚の液晶セル基板の間に、液晶が保持された構成となっている（図示せず）。また、光学フィルム1は、前述のように複屈折層と透明高分子フィルム層の積層体であり、前記複屈折層側が液晶セル21に面しており、透明高分子フィルム側が偏光子2に面している。

【0124】

本発明の液晶表示装置は、視認側の光学フィルム（偏光板）の上に、例えば、さらに拡散板、アンチグレア層、反射防止膜、保護層や保護板を配置したり、または液晶パネルにおける液晶セルと偏光板との間に補償用位相差板等を適宜配置することもできる。

【0125】

なお、本発明の光学フィルムや偏光板は、前述のような液晶表示装置には限定されず、例えば、有機エレクトロルミネッセンス (EL) ディスプレイ、PDP、FED等の自発光型表示装置にも使用できる。自発光型フラットディスプレイに使用する場合は、例えば、本発明の複屈折性光学フィルムの面内位相差値 $\Delta n d$ を $\lambda/4$ にすることで、円偏光を得ることができるため、反射防止フィルターとして利用できる。

【0126】

以下に、本発明の偏光板を備えるエレクトロルミネッセンス (EL) 表示装置について説明する。本発明のEL表示装置は、本発明の光学フィルムまたは偏光板を有する表示装置であり、このEL装置は、有機ELおよび無機ELのいずれでもよい。

【0127】

近年、EL表示装置においても、黒状態における電極からの反射防止として、例えば、偏光子や偏光板等の光学フィルムを $\lambda/4$ 板とともに使用することが提案されている。本発明の偏光子や光学フィルムは、特に、EL層から、直線偏光、円偏光もしくは楕円偏光のいずれかの偏光が発光されている場合、あるいは、正面方向に自然光を発光している場合、斜め方向の出射光が部分偏光している場合等に、非常に有用である。

【0128】

まずここで、一般的な有機EL表示装置について説明する。前記有機EL表示装置は、一般に、透明基板上に、透明電極、有機発光層および金属電極がこの順序で積層された発光体（有機EL発光体）を有している。前記有機発光層は、種々の有機薄膜の積層体であり、例えば、トリフェニルアミン誘導体等からなる正孔注入層とアントラセン等の蛍光性有機固体からなる発光層との積層体や、このような発光層とペリレン誘導体等からなる電子注入層との積層体や、また、前記正孔注入層と発光層と電子注入層との積層体等、種々の組み合わせがあげられる。

10

【0129】

そして、このような有機EL表示装置は、前記陽極と陰極とに電圧を印加することによって、前記有機発光層に正孔と電子とが注入され、前記正孔と電子とが再結合することによって生じるエネルギーが、蛍光物質を励起し、励起された蛍光物質が基底状態に戻るときに光を放射する、という原理で発光する。前記正孔と電子との再結合というメカニズムは、一般のダイオードと同様であり、電流と発光強度とは、印加電圧に対して整流性を伴う強い非線形性を示す。

20

【0130】

前記有機EL表示装置においては、前記有機発光層での発光を取り出すために、少なくとも一方の電極が透明であることが必要なため、通常、酸化インジウムスズ（ITO）等の透明導電体で形成された透明電極が陽極として使用される。一方、電子注入を容易にして発光効率を上げるには、陰極に、仕事関数の小さな物質を用いることが重要であり、通常、Mg-Ag、Al-Li等の金属電極が使用される。

【0131】

このような構成の有機EL表示装置において、前記有機発光層は、例えば、厚み10nm程度の極めて薄い膜で形成されることが好ましい。これは、前記有機発光層においても、透明電極と同様に、光をほぼ完全に透過させるためである。その結果、非発光時に、前記透明基板の表面から入射して、前記透明電極と有機発光層とを透過して前記金属電極で反射した光が、再び前記透明基板の表面側へ出る。このため、外部から視認した際に、有機EL表示装置の表示面が鏡面のように見えるのである。

30

【0132】

本発明の有機EL表示装置は、例えば、前記有機発光層の表面側に透明電極を備え、前記有機発光層の裏面側に金属電極を備えた前記有機EL発光体を含む有機EL表示装置において、前記透明電極の表面に、本発明の光学フィルム（偏光板等）が配置されることが好ましく、さらに $\lambda/4$ 板を偏光板とEL素子との間に配置することが好ましい。このように、本発明の光学フィルムを配置することによって、外界の反射を抑え、視認性向上が可能であるという効果を示す有機EL表示装置となる。また、前記透明電極と光学フィルムとの間に、さらに位相差板が配置されることが好ましい。

40

【0133】

前記位相差板および光学フィルム（偏光板等）は、例えば、外部から入射して前記金属電極で反射してきた光を偏光する作用を有するため、その偏光作用によって前記金属電極の鏡面を外部から視認させないという効果がある。特に、位相差板として $1/4$ 波長板を使用し、かつ、前記偏光板と前記位相差板との偏光方向のなす角を $\pi/4$ に調整すれば、前記金属電極の鏡面を完全に遮蔽することができる。すなわち、この有機EL表示装置に入射する外部光は、前記偏光板によって直線偏光成分のみが透過する。この直線偏光は、前記位相差板によって、一般に楕円偏光となるが、特に前記位相差板が $1/4$ 波長板であ

50

り、しかも前記角が $\pi/4$ の場合には、円偏光となる。

【0134】

この円偏光は、例えば、透明基板、透明電極、有機薄膜を透過し、金属電極で反射して、再び、有機薄膜、透明電極、透明基板を透過して、前記位相差板で再び直線偏光となる。そして、この直線偏光は、前記偏光板の偏光方向と直交しているため、前記偏光板を透過できず、その結果、前述のように、金属電極の鏡面を完全に遮蔽することができるのである。

【実施例1】

【0135】

つぎに、本発明の実施例について比較例と併せて説明する。但し、本発明は、以下の実施例に限定されない。なお、下記の実施例等において、光学フィルムの特性は以下の方法で評価した。

【0136】

(位相差値 $\Delta n d$ 、配向軸精度の測定)

位相差値 $\Delta n d$ および配向軸精度の測定は、位相差計(王子計測機器社製、商品名KOBRA21ADH)を用いて測定した。

【0137】

(屈折率の測定)

屈折率は、王子計測機器社製の商品名KOBRA21ADHを用い、590nmにおける屈折率を測定した。

【0138】

(膜厚測定)

膜厚は、アンリツ製商品名デジタルマイクロメーターK-351C型を使用して測定した。

【0139】

2, 2'-ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)ヘキサフルオロプロパン二無水物と、2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)-4, 4'-ジアミノビフェニルから合成された、重量平均分子量(M_w)7万、複屈折率(Δn)約0.04のポリイミドを、MIBK(メチルイソブチルケトン)に溶解し、固形分濃度15重量%の溶液を得た。この溶液を、150℃で固定端横延伸にて1.3倍横延伸した厚さ7.5 μm のトリアセチルセルロース(TAC)フィルム上に塗布した。このTACフィルムの $\Delta n d$ は20nmであった。その後100℃で10分間の加熱処理により、前記溶液の溶媒蒸発除去を行って層を形成するとともに、前記TACフィルムを収縮させることにより前記層を収縮させ、完全透明で平滑な光学フィルムを得た。得られた複屈折層の光学特性は、 $n_x > n_y > n_z$ となった。

【実施例2】

【0140】

イソブテンおよびN-メチルマレイミドからなる交互共重合体(N-メチルマレイミド含量50モル%)75重量部と、アクリロニトリルの含量が28重量%であるアクリロニトリル-スチレン共重合体25重量部とを塩化メチレンに溶解し、固形分濃度15重量%の溶液を得た。この溶液をガラス板上に敷いたポリエチレンテレフタレート(PET)フィルム上に流延し、室温で60分放置した後PETフィルムからはがし、100℃で10分乾燥後140℃にて10分、さらに160℃で30分乾燥して透明フィルムを得た。フィルムの面内位相差($\Delta n d$)は4nm、Rthは4nmであった。

【0141】

上記のように得た透明フィルムに、実施例1と同様の溶液を塗布した。その後、100℃5分で加熱処理することにより、前記透明フィルムの上に層を形成し、完全透明で平滑なフィルムを得た。得られたフィルムを130℃の温度で10%縦一軸延伸することにより、光学フィルムを得た。得られた光学フィルムの複屈折層の光学特性は、 $n_x > n_y > n_z$ である。

10

20

30

40

50

【実施例 3】

【0142】

2, 2'-ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)ヘキサフルオロプロパン二無水物と、2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)-4, 4'-ジアミノビフェニルから合成された、複屈折率(Δn)約0.05のポリイミドを、酢酸エチルに溶解し、固形分濃度20重量%の溶液を得た。この溶液を実施例1で用いた基材上に塗布した。その後130℃で5分間の加熱処理により、前記溶液の溶媒蒸発除去を行って層を形成するとともに、前記層の収縮処理をして、完全透明で平滑な光学フィルムを得た。得られた光学フィルムの複屈折層の光学特性は、 $n_x > n_y > n_z$ である。

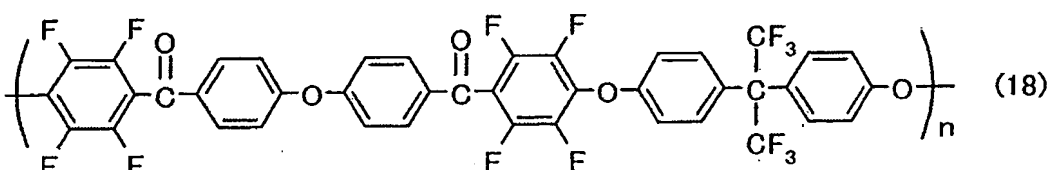
【実施例 4】

【0143】

下記構造式(18)で示される複屈折率(Δn)約0.03のポリエーテルケトン(株式会社日本触媒製、ポリアリールエーテルケトンA)をMIBKに溶解し、固形分濃度20重量%の溶液を調製した。これを130℃で固定端横延伸にて1.3倍横延伸した厚さ75 μm のトリアセチルセルロース(TAC)フィルム上に塗布した。このTACフィルムの Δn_d は15nmであった。その後、100℃で10分間の加熱処理により、前記溶液の溶媒蒸発除去を行って層を形成するとともに、前記層の収縮処理をして、完全透明で平滑な光学フィルムを得た。得られた光学フィルムの複屈折層の光学特性は、 $n_x > n_y > n_z$ である。

【0144】

【化13】



【実施例 5】

【0145】

実施例1と同様の溶液を用い、これを厚さ80 μm のトリアセチルセルロース(TAC)フィルム上に塗布した。このTACフィルムの Δn_d は5nmであった。その後100℃で10分間の加熱処理により、前記溶液の溶媒蒸発除去を行って層を形成して、完全透明で平滑なフィルムを得た。このフィルムを150℃の温度で10%縦一軸延伸して前記層の面内に屈折率の差を生じさせて、光学フィルムを得た。得られた光学フィルムの複屈折層の光学特性は、 $n_x > n_y > n_z$ である。

【実施例 6】

【0146】

実施例1と同様の溶液を用い、これを厚さ80 μm のトリアセチルセルロース(TAC)フィルム上に塗布した。このTACフィルムの Δn_d は5nmであった。その後100℃で10分間の加熱処理により、前記溶液の溶媒蒸発除去を行って複屈折層を形成して完全透明で平滑な光学フィルムを得た。得られた光学フィルムの複屈折層の光学特性は、 $n_x = n_y > n_z$ である。

【実施例 7】

【0147】

4, 4'-ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)-2, 2-ジフェニルプロパン二無水物と、2, 2'-ジクロロ-4, 4'-ジアミノビフェニルから合成された、重量平均分子量(M_w)3万のポリイミドを、シクロペンタノンに溶解し、固形分濃度20重量%の溶液を得た。この溶液を、実施例1と同様の処理を行ったTACフィルム上に塗布した。その後、140℃で10分間の加熱処理により、前記溶液の溶媒蒸発除去を行って層を形成するとともに、前記層の収縮処理をして、完全透明で平滑な光学フィルムを得た。得られた光学フィルムの複屈折層の光学特性は、 $n_x > n_y > n_z$ である。

【比較例 1】

【0148】

実施例 1 と同様の溶液を用い、これを厚み $75\mu\text{m}$ 、 $\Delta n d = 4000\text{nm}$ の PET フィルム上に塗布した。その後 150°C で 10 分間の加熱処理により、前記溶液の溶媒蒸発除去を行って複屈折層を形成し、完全透明で平滑な光学フィルムを得た。この光学フィルムの前記複屈折層は、 $n_x = n_y > n_z$ の光学特性を持っていた。しかし、PET フィルムの面内位相差が大きすぎるため、光学フィルムの光学特性には問題があり、PET フィルムから複屈折層を剥離して偏光子等の光学部材に転写して使用する必要があった。

【比較例 2】

【0149】

実施例 1 と同じ溶液を、 150°C で自由端縦延伸にて 1.5 倍横延伸した厚さ $150\mu\text{m}$ の TAC フィルム上に塗布した。この TAC フィルムの $\Delta n d$ は 70nm であった。その後 100°C で 10 分間の加熱処理により、前記溶液の溶媒蒸発除去を行って複屈折層を形成し、完全透明で平滑な光学フィルムを得た。この光学フィルムの前記複屈折層は、 $n_x = n_y > n_z$ の光学特性を持っていた。しかし、PET フィルムの面内位相差が大きすぎるため、光学フィルムの光学特性には問題があり、PET フィルムから複屈折層を剥離して偏光子等の光学部材に転写して使用する必要があった。

【0150】

前記各実施例及び各比較例で得られた光学フィルムについて、厚み、光学フィルムの面内位相差 $A(\Delta n d)$ 、透明高分子フィルムの面内位相差 $B(\Delta n d)$ 、複屈折層の複屈折率 $(\Delta n(a))$ および透明高分子フィルムの複屈折率 $(\Delta n(b))$ を調べた結果を下記表 1 に示す。

(表 1)

	厚み (μm)	$A(\Delta n d)$	$B(\Delta n d)$	$\Delta n(a)$	$\Delta n(b)$
実施例 1	6	135	20	0.04	0.0006
実施例 2	6	120	4	0.04	0.001
実施例 3	10	70	20	0.05	0.0006
実施例 4	10	80	15	0.03	0.0006
実施例 5	8	150	20	0.04	0.0006
実施例 6	6	0.3	5	0.04	0.0006
実施例 7	6	130	20	0.025	0.0006
比較例 1	6	0.9	4000	0.04	0.08
比較例 2	6	150	70	0.04	0.0007

前記各実施例および比較例で得られた光学フィルムについて、液晶表示特性 (LCD 表示特性) について、調べた。すなわち、まず、光学フィルムと偏光板 (日東電工 (株) 製、商品名「HEG1425DU」) を、アクリル系粘着剤を介し積層して光学補償層一体型偏光板を得た。これを液晶セルのバックライト側に偏光板が外側となるように接着して液晶表示装置を作製した。そして、前記液晶表示装置の正面コントラストについて調べた。その結果を下記の表 2 に示す。また、実施例 1 および比較例 1 については、虹ムラの発生の有無を調べた。その結果を図 5 (実施例 1) および図 6 (比較例 1) の写真に示す。なお、正面コントラストは、下記の方法により測定した。

(正面コントラスト)

前記液晶表示装置に、白画像および黒画像を表示させ、商品名 Ez contrast 160D (ELDIM 社製) により、表示画面の正面における、XYZ 表示系の Y 値、x 値、y 値をそれぞれ測定した。そして、白画像における Y 値 (Y_w) と、黒画像における Y 値 (Y_b) とから、正面 (視野角 0°) コントラスト (Y_w/Y_b) を算出した。

(表 2)

正面コントラスト*

10

20

30

40

50

実施例 1	○
実施例 2	○
実施例 3	○
実施例 4	○
実施例 5	○
実施例 6	○
実施例 7	○
比較例 1	×
比較例 2	×

10

* コントラスト 100 以上を○、100 未満を×とした。

前記表 1 に示すように、全実施例は、コントラストに優れていた。これに対し、比較例では、コントラストに問題があった。また、図 5 に示すように、実施例 1 においては、虹ムラが発生しなかった。これに対し、図 6 に示すように、比較例 1 では、虹ムラが発生した。

【産業上の利用可能性】

【0151】

以上のように、本発明の光学フィルムは、光学特性に優れ、簡単かつ低コストで製造することができる。したがって、本発明の光学フィルムは、例えば、液晶表示装置や自発光型表示装置等の表示装置の光学部材として有用である。

20

【図面の簡単な説明】

【0152】

【図 1】 本発明の偏光板の一例を示す断面模式図である。

【図 2】 本発明の偏光板のその他の例を示す断面模式図である。

【図 3】 本発明の液晶表示装置の一例を示す断面模式図である。

【図 4】 本発明の光学フィルムの軸方向の一例を示す図である。

【図 5】 本発明の光学フィルムの一実施例において虹ムラを評価した写真である。

【図 6】 比較例の光学フィルムにおいて虹ムラを評価した写真である。

【符号の説明】

30

【0153】

1 複屈折層

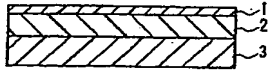
2 偏光子

3 保護フィルム

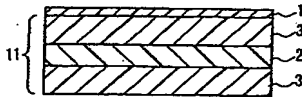
11 偏光板

21 液晶セル

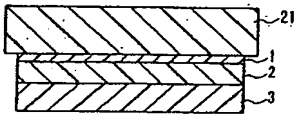
【図 1】



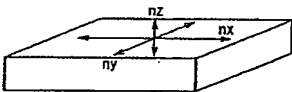
【図 2】



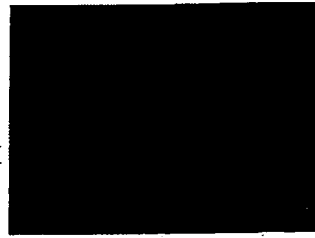
【図 3】



【図 4】

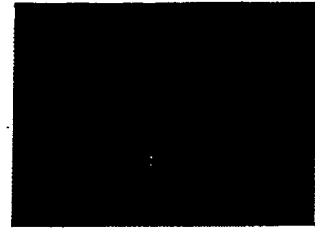


【図 5】



虹ムラなし

【図 6】



虹ムラあり

フロントページの続き

(72)発明者 林 政毅

大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内

Fターム(参考) 2H049 BA03 BA06 BA42 BB03 BB42 BB44 BB45 BB65 BC03 BC09
BC22

2H091 FA08X FA08Z FA11X FA11Z FC07 FD06 GA16 LA12 LA16 LA21
3K007 AB17 BB06 DB03